

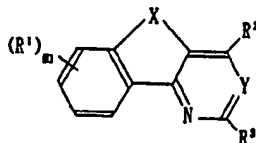


## 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類 5 C07D 221/16, 239/93, 401/04 C07D 403/04, 409/04, 487/04	A1	(11) 国際公開番号 WO 93/08167  (43) 国際公開日 1993年4月29日 (29.04.1993)
(21) 国際出願番号 PCT/JP92/01384 (22) 国際出願日 1992年10月23日 (23. 10. 92)  (30) 優先権データ 特願平3/303771 1991年10月24日 (24. 10. 91) JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 日本曹達株式会社 (NIPPON SODA CO., LTD.) [JP/JP] 〒100 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 梅田信広 (UMEDA, Nobuhiro) [JP/JP] 斉藤健司 (SAITO, Kenji) [JP/JP] 細川浩靖 (HOSOKAWA, Hiroyasu) [JP/JP] 橋本 幸 (HASHIMOTO, Sho) [JP/JP] 〒250-02 神奈川県小田原市高田字柳町345 日本曹達株式会社 小田原研究所内 Kanagawa, (JP) (74) 代理人 弁理士 東海裕作, 外 (TOKAI, Yusaku et al.) 〒100 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 日本曹達株式会社内 Tokyo, (JP)	(81) 指定国 AT (欧州特許), BE (欧州特許), CH (欧州特許), DE (欧州特許), DK (欧州特許), ES (欧州特許), FR (欧州特許), GB (欧州特許), GR (欧州特許), IE (欧州特許), IT (欧州特許), JP, LU (欧州特許), MC (欧州特許), NL (欧州特許), SE (欧州特許), US.  添付公開書類 国際調査報告書	

(54) Title : NOVEL HETEROCYCLIC DERIVATIVE AND AGROHORTICULTURAL BACTERICIDE CONTAINING SAME

(54) 発明の名称 新規ヘテロ環誘導体及びその農薬用殺菌剤



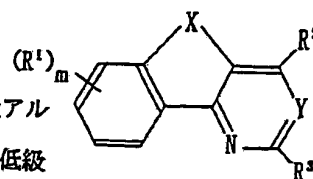
(I)

(57) Abstract

A compound represented by general formula (I), a salt thereof, a process for the production thereof, and an agrohorticultural bactericide containing same, wherein m represents an integer of 1 to 4; R<sup>1</sup> represents hydrogen, lower alkyl, lower alkoxy, etc.; X represents C=Z [wherein Z represents oxygen, CH(OH), Cr<sup>1</sup>(r<sup>2</sup>) (wherein r<sup>1</sup> and r<sup>2</sup> represent each cyano, alkoxy-carbonyl, carbamoyl, etc.) or Nr<sup>3</sup> (wherein r<sup>3</sup> represents lower alkyl, phenyl, lower alkoxy, lower alkylamino, hydroxy, phenylamino, lower alkoxy-carbonyl, nylamin, etc.)], CH(OH) or CH<sub>2</sub>; Y represents N or C(R<sup>4</sup>) (wherein R<sup>4</sup> represents hydrogen or lower alkoxy-carbonyl); R<sup>2</sup> represents hydrogen, S(O)<sub>n</sub>r<sup>5</sup> (wherein r<sup>5</sup> represents lower alkyl, and n represents 0, 1 or 2), lower alkoxy, etc.; and R<sup>3</sup> represents hydrogen, lower alkoxy, lower alkyl, phenyl, a 5- or 6-membered heterocyclic group containing two atoms selected among N, S and O, etc.

(57) 要約 本発明は一般式〔I〕で表される化合物、その塩、  
製造方法およびその農園芸用殺菌剤である。

〔I〕



〔式中、mは1～4の整数、R<sup>1</sup>は、同一又は相異なって、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルチオ基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、低級アルキルでモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基またはハロゲン原子を表し、XはC=Z〔Zは酸素原子、CH(OH)、Cr<sup>1</sup>(r<sup>2</sup>) (r<sup>1</sup>, r<sup>2</sup>は同一又は相異なってシアノ基、アルコキシカルボニル基、または低級アルキルでモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基を表す。)、Nr<sup>3</sup> (r<sup>3</sup>は低級アルキル基、置換されてもよいフェニル基、低級アルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、置換されてもよいフェニルアミノ基、低級アルコキシカルボニルアミノ基を表す。))、CH(OH)、CH<sub>2</sub>を表し、YはN、C(R<sup>4</sup>) (R<sup>4</sup>は、水素原子、低級アルコキシカルボニル基を表す。)を表し、R<sup>2</sup>は、水素原子、S(O)<sub>n</sub> (r<sup>5</sup>は置換されてもよい低級アルキル基、nは0、1又は2を表す。)、低級アルコキシ基、低級アルキルスルホニルアミノ基、置換されてもよいフェニルスルホニルアミノ基、シアノ基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、モルホリノ基、又は置換されてもよいフェニルアルキルもしくは低級アルキルで置換されていてもよいアミノ基を、R<sup>3</sup>は、水素原子、低級アルコキシ基、低級アルキル基、シクロアルキル基、置換されてもよいベンゾイル基、置換されてもよいチエニルカルボニル基、置換されてもよいピリジルカルボニル基、低級アルコキシアルキル基、低級アルキルチオ基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいN、S、Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環基、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基、又はシアノ、ニトロ、N、S、Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環で置換されたアルキル、置換されてもよいフェニル、低級アルコキシもしくは低級アルキルで置換されてもよいアミノ基を表す。〕

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第1頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AT オーストリア	FR フランス	NL オランダ
AU オーストラリア	GA ガボン	NO ノルウェー
BB パルバードス	GB イギリス	NZ ニュージーランド
BE ベルギー	GN ギニア	PL ポーランド
BF ブルキナ・ファソ	GR ギリシャ	PT ポルトガル
BG ブルガリア	HU ハンガリー	RO ルーマニア
BJ バナン	IE アイルランド	RU ロシア連邦
BR ブラジル	IT イタリア	SD スーダン
CA カナダ	JP 日本	SE スウェーデン
CF 中央アフリカ共和国	KP 朝鮮民主主義人民共和国	SK スロヴァキア共和国
CG コンゴ	KR 大韓民国	SN セネガル
CH スイス	LI リヒテンシュタイン	SU ソヴィエト連邦
CI コート・ジボアール	LK スリランカ	TD チャード
CM カメルーン	LU ルクセンブルグ	TG トーゴ
CS チェコスロヴァキア	MC モナコ	UA ウクライナ
CZ チェコ共和国	MG マダガスカル	US 米国
DE ドイツ	ML マリ	VN ヴェトナム
DK デンマーク	MN モンゴル	
FI フィンランド	MR モーリタニア	
ES スペイン	MW マラウイ	

## 明 細 書

## 新規ヘテロ環誘導体及びその農園芸用殺菌剤

## 技術分野：

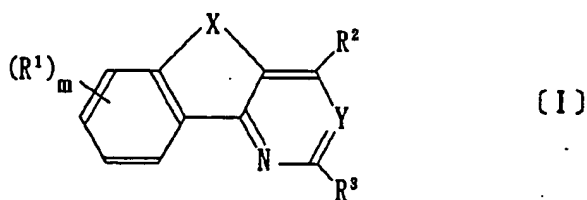
本発明は、新規なヘテロ環誘導体及びその農園芸用殺菌剤に関する。

## 背景技術：

農園芸作物の栽培に当り、作物の病害に対して多数の防除薬剤が使用されているが、その防除効力が不十分であったり薬剤耐性の病原菌や害虫の出現によりその使用が制限されたりまた植物体に薬害や汚染を生じたり、あるいは人畜魚類に対する毒性が強かったりすることから、必ずしも満足すべき防除薬とは言い難いものが少なくない。従ってかかる欠点の少ない安全に使用できる薬剤の出現が強く要請されている。

本発明の目的は、工業的に有利に合成でき効果が確実で、安全に使用できる農園芸用殺菌剤となりうる新規化合物を提供することにある。

本発明は、一般式〔I〕



〔式中、 $m$ は1～4の整数、 $R^1$ は、同一又は相異なって、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルチオ基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、低級アルキルでモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基またはハロゲン原子を表し、 $X$ は  $C=Z$  ( $Z$ は酸素原子、 $CH(OH)$ 、 $Cr^1(r^2)$  ( $r^1$ 、 $r^2$ は同一又は相異なってシアノ基、アルコキシカルボニル基、または低級アルキルでモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基を表す。))、 $Nr^3$  ( $r^3$ は低級アルキル基、置換されてもよ

いフェニル基、低級アルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、置換されてもよいフェニルアミノ基、低級アルコキシカルボニルアミノ基を表す。))、 $\text{CH(OH)}$ 、 $\text{CH}_2$ を表し、YはN、C( $\text{R}^4$ ) ( $\text{R}^4$ は、水素原子、低級アルコキシカルボニル基を表す。)を表し、 $\text{R}^2$ は、水素原子、S(O)、 $\text{r}^5$  ( $\text{r}^5$ は置換されてもよい低級アルキル基、nは0、1又は2を表す。)、低級アルコキシ基、低級アルキルスルホニルアミノ基、置換されてもよいフェニルスルホニルアミノ基、シアノ基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、モルホリノ基、又は置換されてもよいフェニルアルキルもしくは低級アルキルで置換されていてもよいアミノ基を、 $\text{R}^3$ は、水素原子、低級アルコキシ基、低級アルキル基、シクロアルキル基、置換されてもよいベンゾイル基、置換されてもよいチエニルカルボニル基、置換されてもよいピリジルカルボニル基、低級アルコキシアルキル基、低級アルキルチオ基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいN、S、Oを1~2個含む5~6員のヘテロ環基、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基、又はシアノ、ニトロ、N、S、Oを1~2個含む5~6員のヘテロ環で置換されたアルキル、置換されてもよいフェニル、低級アルコキシもしくは低級アルキルで置換されてもよいアミノ基を表す。)で表される化合物及びその塩の1種又は2種以上を含有する農園芸用殺菌剤である。

一般式〔I〕の置換基を更に説明する。

$\text{r}^3$ が置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいフェニルアミノ基を表す場合における置換基の種類としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アルキルチオ基、シアノ基、ニトロ基、置換されてもよいカルバモイル基などが挙げられる。

$\text{r}^6$ が置換されてもよい低級アルキル基を表す場合における置換基の種類としては、ハロゲン原子、アルコキシ基、アルキルチオ基、アルキルアミノ基、フェニル基、アルコキシカルボニル基、置換されてもよいカルバモイル基などが挙げられる。

$r^5$ が置換されてもよいフェニルスルホニルアミノ基を表す場合における置換基の種類としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アルキルチオ基、ニトロ基、シアノ基、置換されてもよいカルバモイル基などが挙げられる。

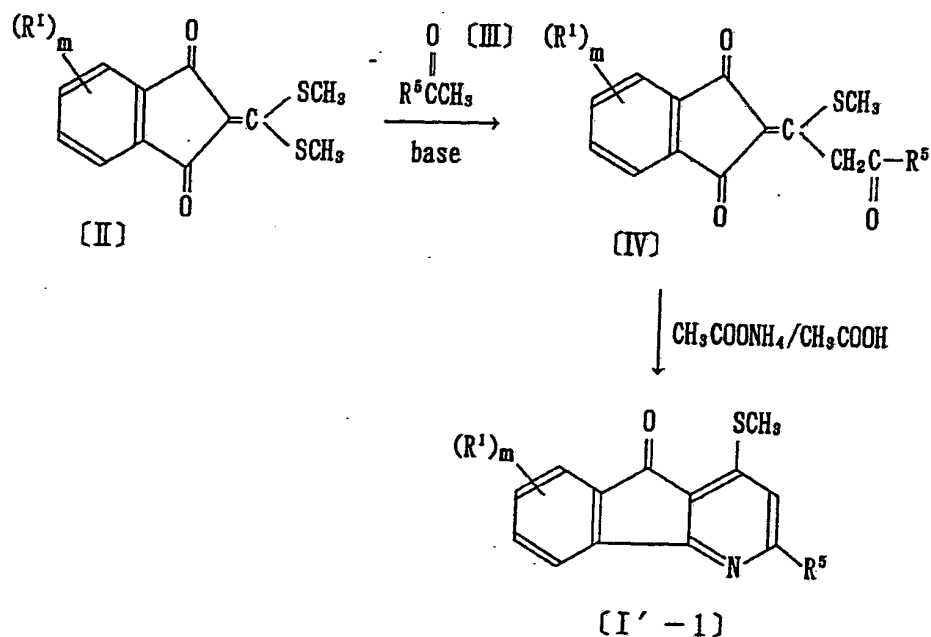
$r^5$ が置換されてもよいフェニルアルキルで置換されてもよいアミノ基を表す場合におけるフェニルアルキルの置換基の種類としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ニトロ基、シアノ基、アルキルアミノ基、アルコキシカルボニル基、置換されてもよいカルバモイル基などが挙げられる。

$R^3$ が置換されてもよいベンゾイル基、置換されてもよいチエニルカルボニル基、置換されてもよいピリジルカルボニル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基、又は置換されてもよいフェニルで置換されてもよいアミノ基を表す場合における置換基の種類としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アルキルチオ基、ニトロ基、置換されてもよいカルバモイル基などが挙げられる。

$R^3$ が置換されてもよいN, S, Oを1~2個含む5~6員のヘテロ環基、又はN, S, Oを1~2個含む5~6員のヘテロ環で置換されたアルキルで置換されてもよいアミノ基を表す場合におけるヘテロ環として、チオフェン、フラン、イミダゾール、チアゾール、オキサゾール、ピラゾール、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モリホリン、ピリジニウムなどが挙げられ、置換基の種類としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アルキルアミノ基、ニトロ基、置換されてもよいカルバモイル基などが挙げられる。

本発明化合物は以下に示す方法により製造することができる。

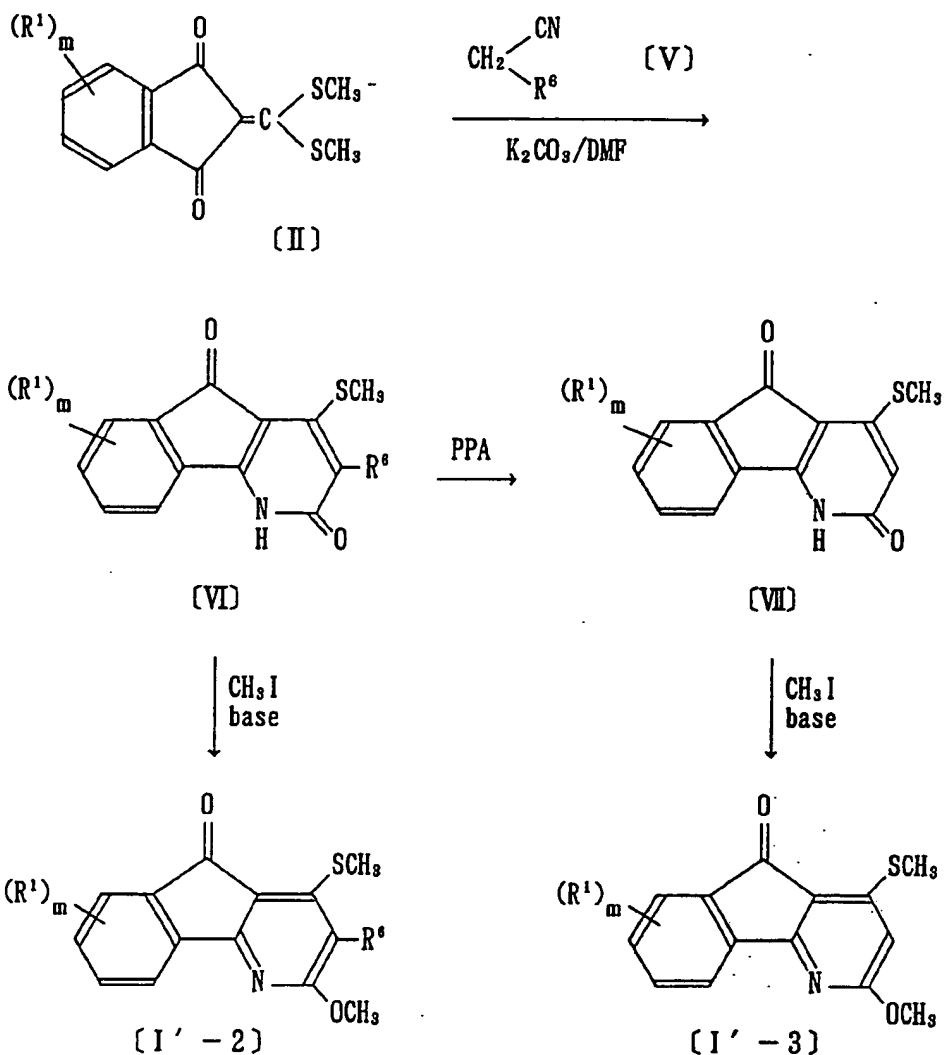
①



式中、 $R^5$  は低級アルキル基、シクロアルキル基、低級アルコキシアリル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいN, S, Oを1~2個含む5~6員のヘテロ環基（但し、炭素原子で結合する）、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基を示し、 $R^1$ 、 $m$ は前記と同じ意味を示す。

[I' - 1] は [IV] に、酢酸等の溶媒中、酢酸アンモニウム等のアンモニウム塩を反応温度10~100℃で反応させることにより得られる。

②



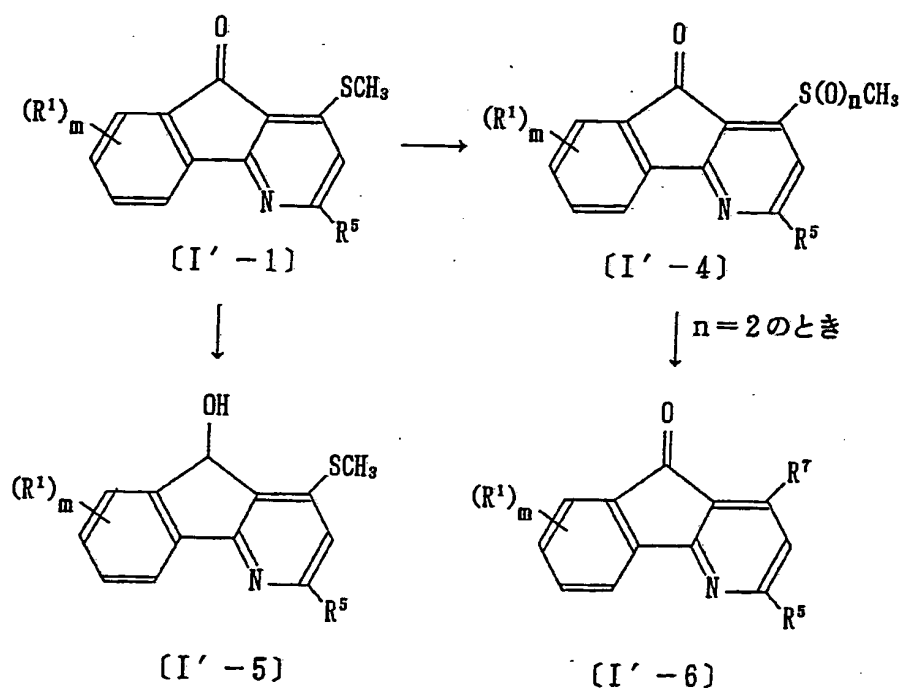
式中 $R^6$ は低級アルコキシカルボニル基を示し、 $R^1$ 、 $m$ は前記と同じ意味を示す。

式 [VI] および [VII] の化合物は公知であるか、または常法により合成できる。  
 (薬学雑誌, 104 (2), 127頁 (1984)) [I'-2] および [I'-3] は、溶媒中、塩基の存在下、反応温度10~100℃で反応させることにより得られる。

溶媒としては、メタノール、エタノール、 $n$ -ブタノール等のアルコール類、

ジオキサン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素、ピリジン、DMF、DMSO等が挙げられる。塩基としては、ナトリウムメトキシド、カリウム *tert*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド、トリエチルアミン、N,N-ジメチルアニリン、ピリジン、DBU等の有機塩基、水素化ナトリウム等の金属水素化物、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、炭酸銀等の無機塩基が挙げられる。

③



式中、R<sup>7</sup> は低級アルコキシ基、シアノ基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、モルホリノ基、又は置換されてもよいフェニルアルキルもしくは低級アルキルで置換されてもよいアミノ基を示し、R<sup>1</sup>、m、nは前記と同じ意味を示す。

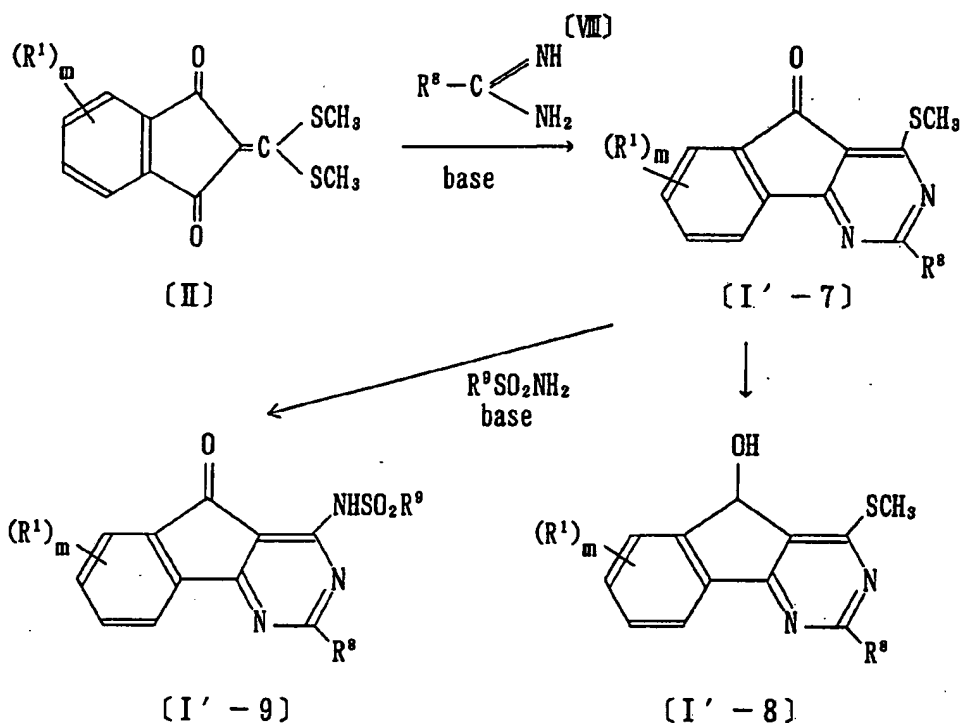
[I'-4] は、[I'-1] に、クロロホルム、酢酸等の溶媒中、メタクロロ過安息香酸、過酸化水素等の酸化剤を反応させることにより得られる。

[I'-5] は、メタノール、エタノール等の溶媒中、[I'-1] に水素化ホウ素ナトリウム等の還元剤を反応させることにより得られる。



〔I' - 6〕は〔I' - 4〕に、溶媒中、塩基の存在下、求核剤を反応することにより得られる。

④



式中、 $R^8$  は水素原子、低級アルコキシ基、低級アルキル基、シクロアルキル基、低級アルコシキアルキル基、低級アルキルチオ基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいN, S, Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環基、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基、又はシアノ、ニトロ、N, S, Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環で置換されたアルキル、置換されてもよいフェニル、低級アルコキシもしくは低級アルキルで置換されてもよいアミノ基を示し、 $R^9$  は低級アルキル基又は置換されてもよいフェニル基を示し、 $R^1$ 、 $m$ は前記と同じ意味を示す。

〔I' - 7〕は、〔II〕と〔VII〕とを、溶媒中、塩基の存在下、反応温度10

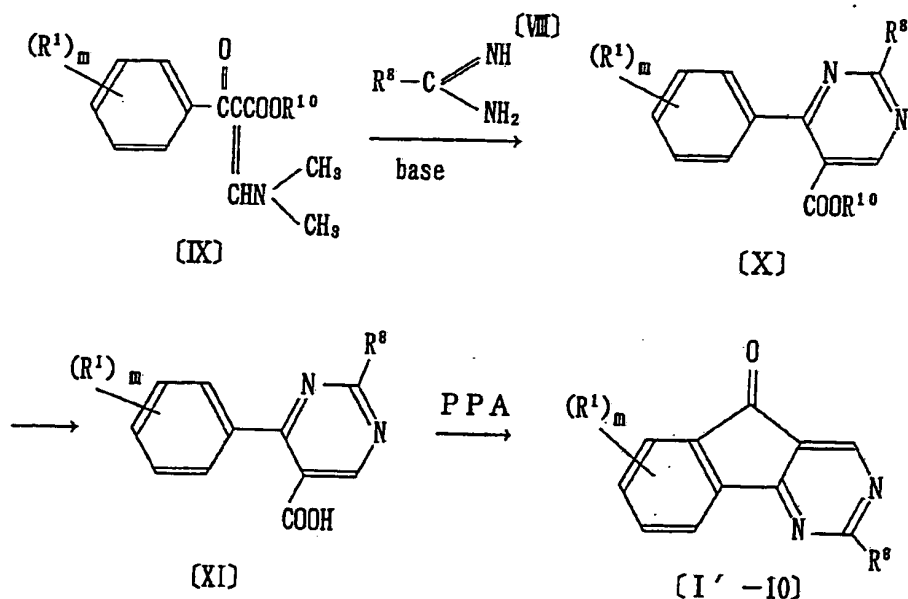
～100℃で反応させることにより得られる。

溶媒としては、水、メタノール、エタノール、*n*-ブタノール等のアルコール類、ジオキサン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素、ピリジン、DMF、DMSO等が挙げられる。塩基としてはナトリウムメトキシド、カリウム *t*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド、トリエチルアミン、*N*, *N*-ジメチルアニリン、ピリジン、DBU等の有機塩基、水素化ナトリウム等の金属水素化物、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム等の無機塩基が挙げられる。

〔I' - 8〕はメタノール、エタノール等の溶媒中、〔I' - 7〕に水素化ホウ素ナトリウム等の還元剤を反応させることにより得られる。

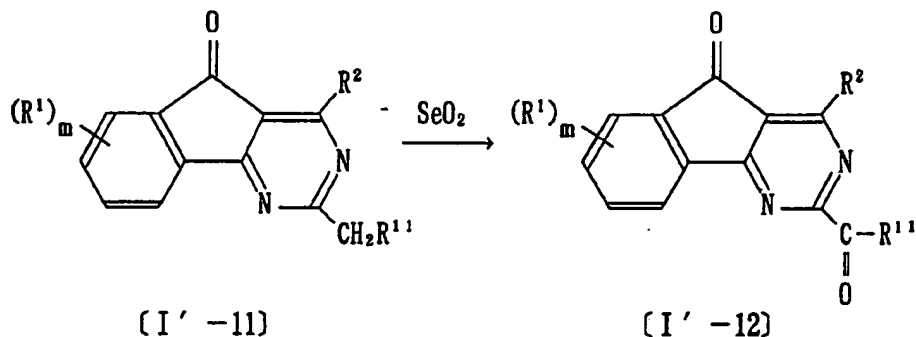
〔I' - 9〕は、〔I' - 7〕と  $R^8SO_2NH_2$  を、DMF、DMSO等の溶媒中、水素化ナトリウム等の金属水素化物を塩基として用いて反応温度10～150℃で反応させることにより得られる。

⑤



式中、 $R^{10}$ は低級アルキル基を示し、 $R^8$ は前記と同じ意味を示す。〔I' - 10〕は〔XI〕とポリリン酸 (PPA) を100～200℃に加熱することにより得られる。

⑥

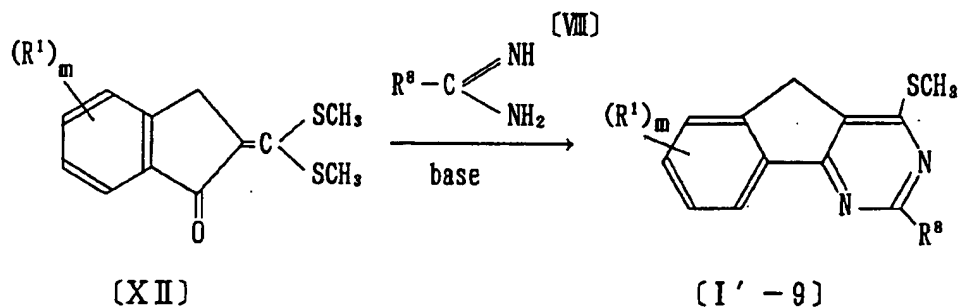


式中、 $R^{11}$ は置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいチエニル基又は置換されてもよいピリジル基を示し、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^2$ は前記と同じ意味を示す。

〔I' - 12〕は、〔I' - 11〕（〔II〕を原料に用いて〔I' - 7〕を製造する場合と同様の条件で合成される）ジオキサン等のエーテル類、エタノール等のアルコール類、水及びそれらの混合物の溶媒中、二酸化セレンで1～24時間、加熱還流することにより得られる。また、ACS Monograph 186

“Oxidations in Organic Chemistry”, 1990, 103-104に記載されている無水クロム酸、二酸化マンガン等の酸化剤を用いても得ることができる。

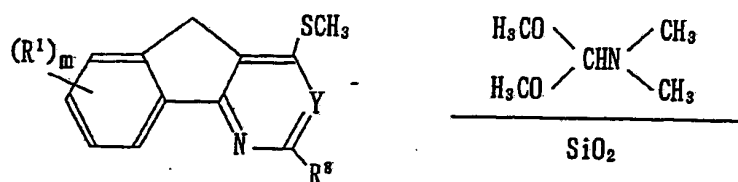
⑦



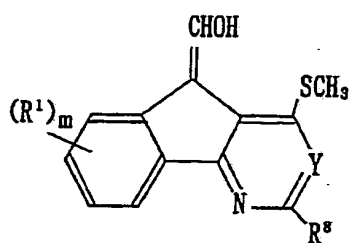
式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$ は前記と同じ意味を示す。

式〔XII〕の化合物は公知であるか、又は常法により合成できる（例えば、Tetrahedron, 42 (12), 3029-96 (1986)）。式〔I' - 9〕の化合物は〔I' - 7〕の化合物を製造する場合と同様の条件で反応させることにより得られる。

⑧



[I' -10]

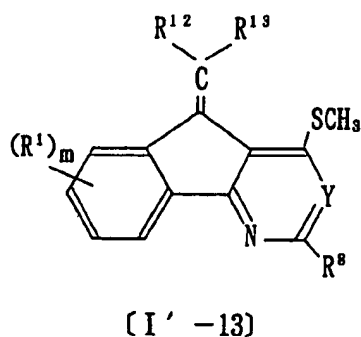
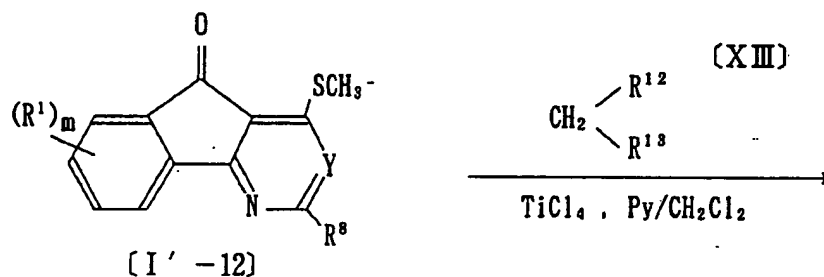


[I' -11]

式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$ 、 $Y$ は前記と同じ意味を示す。

[I' -11]の化合物はDMF、DMSO等の溶媒中、あるいは無溶媒で、  
[I' -10]の化合物とN, N-ジメチルホルムアミドジメチルアセタールと  
加熱還流した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより得  
られる。

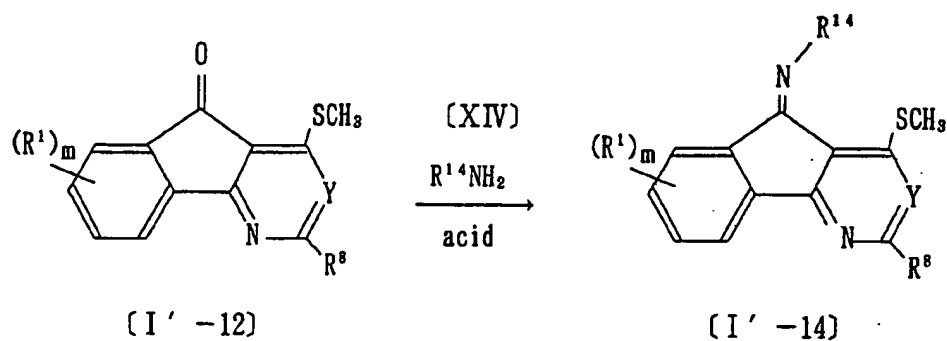
⑨



式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$ 、 $Y$ は前記と同じ意味を示す。

式 (XIII) の化合物は活性メチレン化合物を示し、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ は同一又は相異なって、シアノ基、アルコキシカルボニル基、低級アルキル基でモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基を示す。式 (I' - 13) の化合物は常法により合成できる (Liebigs Ann. Chem., 1984, 618-21)。

⑩



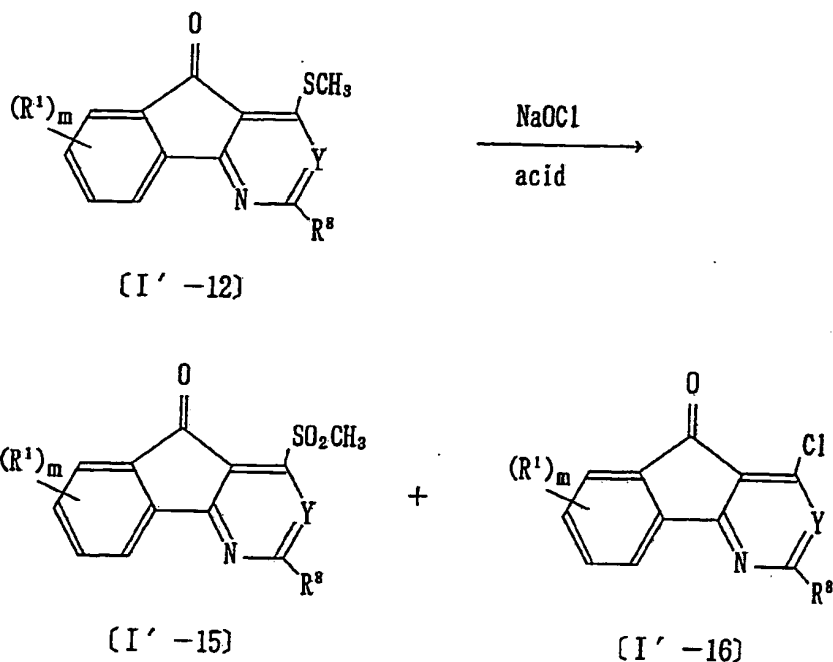
式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$ 、 $Y$ は前記と同じ意味を示す。

式〔XIV〕の化合物は1級アミン、ヒドラジン、ヒドロキシアミン又はアルコキシアミンを示し、 $R^{14}$ は低級アルキル基、置換されてもよいフェニル基、低級アルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、置換されてもよいフェニルアミノ基、低級アルコキシカルボニルアミノ基を示す。

〔I' - 14〕の化合物は溶媒中、酸の存在下、反応温度10～150℃で反応させることにより得られる。

溶媒としてはメタノール、エタノール、 $n$ -ブタノール等のアルコール類、ジオキサン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、DMF、DMSO等が挙げられる。酸としては、塩酸、硫酸等の無機酸、シュウ酸、パラトルエンスルホン酸等の有機酸、三フッ化ホウ素エーテラート等のルイス酸等が挙げられる。

⑪



式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$ 、 $Y$ は前記と同じ意味を示す。

式〔I' - 15〕及び〔I' - 16〕の化合物は、溶媒中、酸の存在下-5～40℃で次亜塩素酸ナトリウムを加えることにより得られる。

溶媒としては水、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素等が挙げられる。酸としては、塩酸、硫酸等の無機酸等が挙げられる。

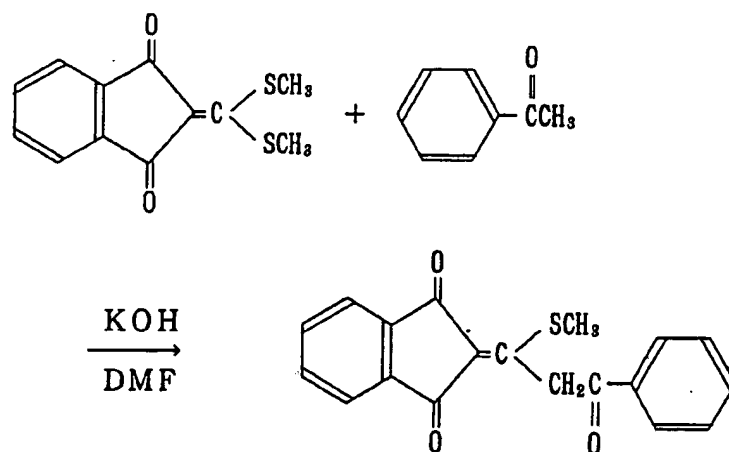
反応終了後は、通常の後処理を行うことにより目的物を得ることができる。本発明化合物の構造は、IR、NMR、MASS等から決定した。

発明を実施するための最良の形態：

次に実施例、参考例を挙げて本発明を更に詳しく説明する。

#### 参考例1

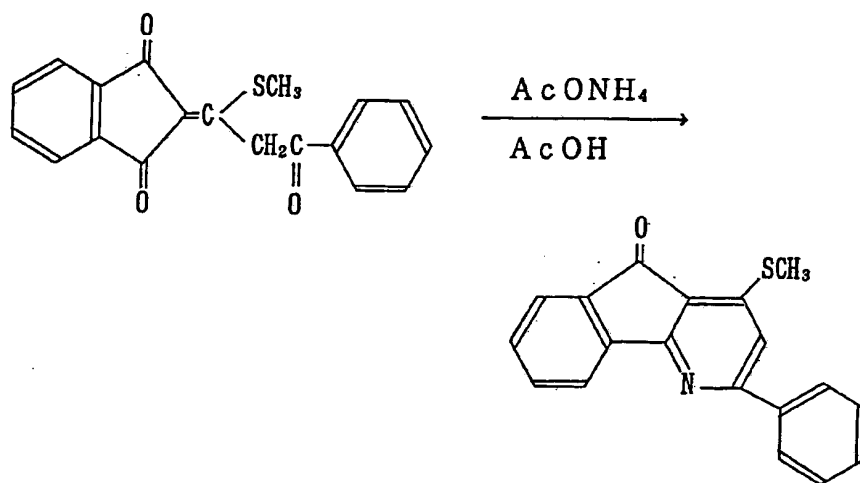
2-〔3-オキソ-3-フェニル-1-メチルチオプロピリデン〕-インダン-1,3-ジオン



2-ビス(メチルチオ)メチレン-インダン-1,3-ジオン12.5g、アセトフェノン6.0g、よくすりつぶした水酸化カリウム6.6g及び無水DMF 200mlを懸濁し、室温で一晩攪拌した。反応液を氷水中に注ぎ1N-HClを加えてpHを3～4にした。析出した結晶を減圧濾過し、乾燥して2-〔3-オキソ-3-フェニル-1-メチルチオプロピリデン〕-インダン-1,3-ジオン12gを得た。

## 実施例 1

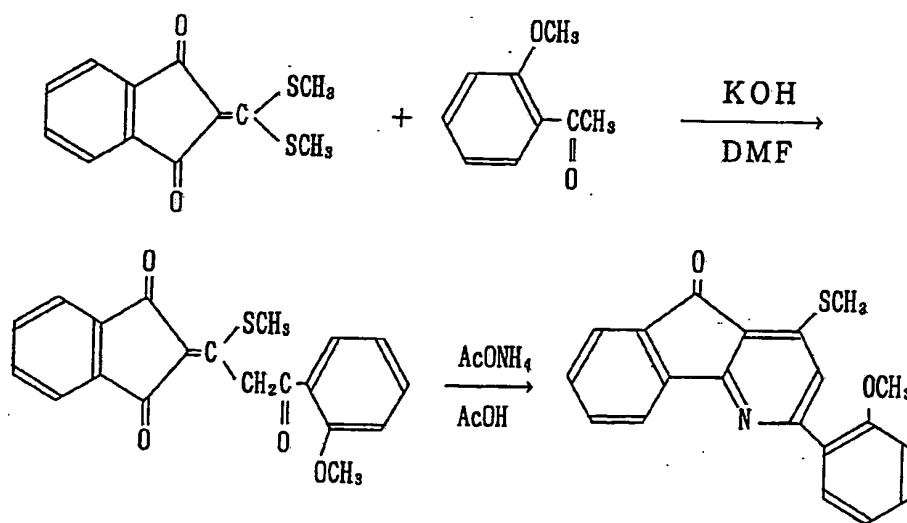
2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン (化合物番号 I-3)



参考例 1 で得られた化合物 12 g、酢酸アンモニウム 28.5 g 及び酢酸 750 ml を 100℃ で 6 時間攪拌し、一夜放置した。析出した結晶を濾過し、アセトン、エーテルで洗浄して目的物を 4.5 g (m. p. 179-80℃) を得た。

## 実施例 2

2-(2-メトキシフェニル)-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン (化合物番号 I-6)

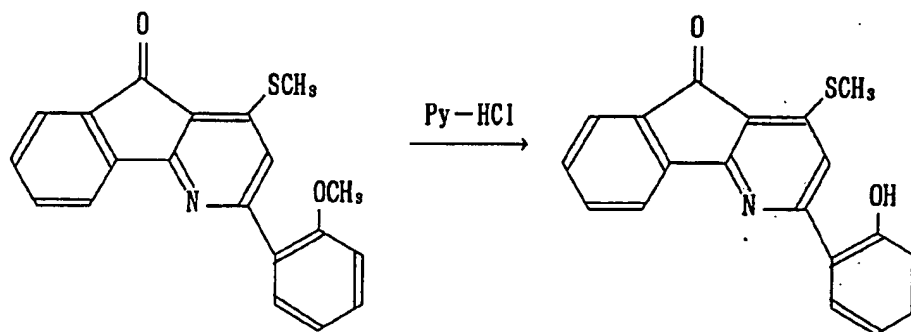




2-ビス(メチルチオ)メチレン-インダン-1, 3-ジオン2.5 g、2-メトキシアセトフェノン1.5 g、よくすりつぶした水酸化カリウム6.6 g及び無水DMF 40 mlを懸濁し、70℃で3時間、続いて100℃で1時間攪拌した。反応液を氷水中に注ぎ1N-HClを加えpHを3~4にして析出した結晶を減圧濾過し、乾燥して1.4 gの結晶を得た。得られた結晶1.4 gと酢酸アンモニウム3.07 gを酢酸75 mlに懸濁し、100℃で6時間攪拌した。反応液を氷水中に注ぎ、析出した結晶を濾取し乾燥した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液;クロロホルム)精製して、目的物0.4 g (mp 200-2℃)を得た。

### 実施例3

(2-(2-ヒドロキシフェニル)-4-メチルチオ-5H-インデノ[1, 2-b]ピリジン-5-オン(化合物番号I-10)

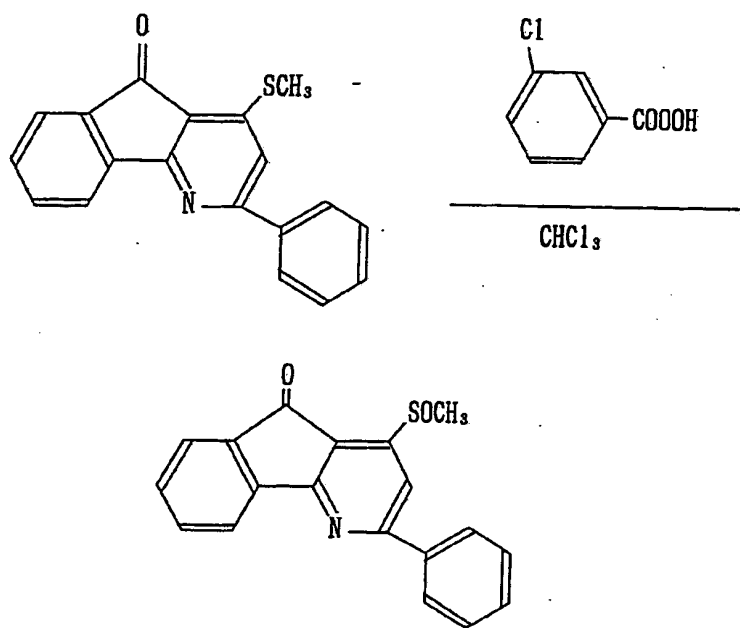


2-(2-メトキシフェニル)-4-メチルチオ-5H-インデノ[1, 2-b]ピリジン-5-オン0.95 gとピリジン塩酸塩10 gを窒素雰囲気下で150℃20分攪拌した。放冷後氷-水を加えクロロホルム抽出し、飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して、得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液、クロロホルム)で精製して目的物0.45 g (mp 228-30℃)を得た。

### 実施例4

2-フェニル-4-メチルスルフィニル-5H-インデノ[1, 2-b]ピリ

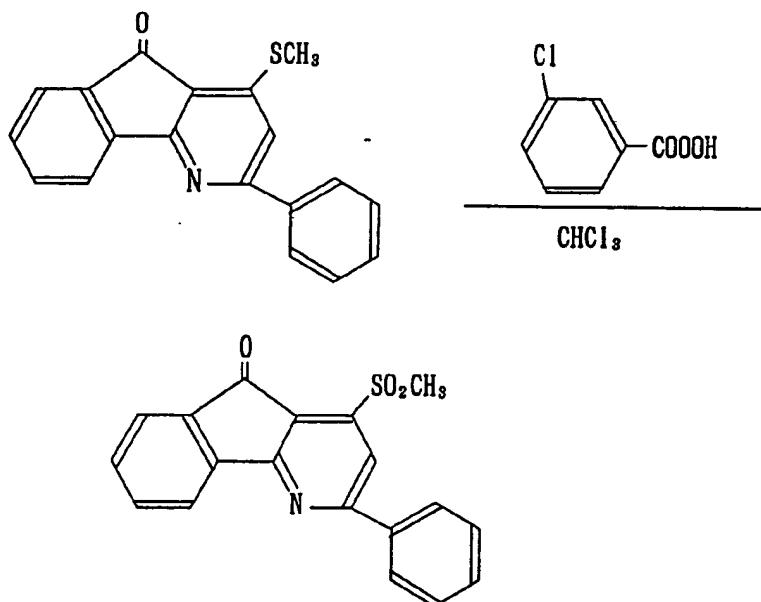
## ジン-5-オン (化合物番号 I-11)



2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン0.64 gをクロロホルム50 mlに溶解し、クロロホルム20 mlに溶解したメタクロロ過安息香酸0.41 gを室温で滴下し3時間攪拌した。反応液を1 N-水酸化ナトリウム水溶液、次いで飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去し、得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製して目的物0.55 g（mp 228-9℃）を得た。

## 実施例5

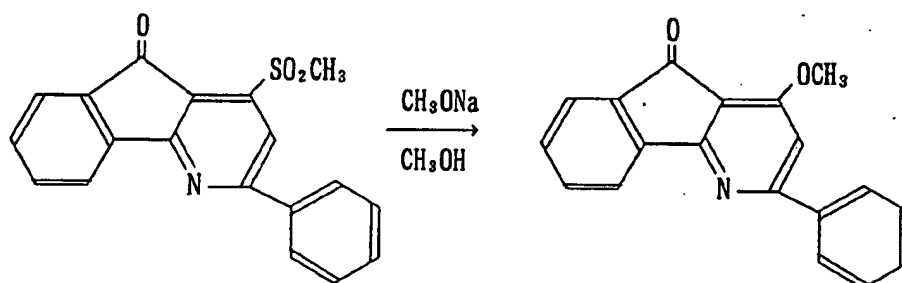
2-フェニル-4-メチルスルホニル-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン (化合物番号 I-12)



2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1,2-b〕ピリジン-5-オン0.64gをクロロホルム50mlに溶解し、クロロホルム50mlに溶解したメタクロロ過安息香酸1.23gを滴下し、1時間還流した。放冷後反応液を1N-水酸化ナトリウム水溶液、次いで飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去し、得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製して目的物0.4g（mp 232-3℃）を得た。

#### 実施例 6

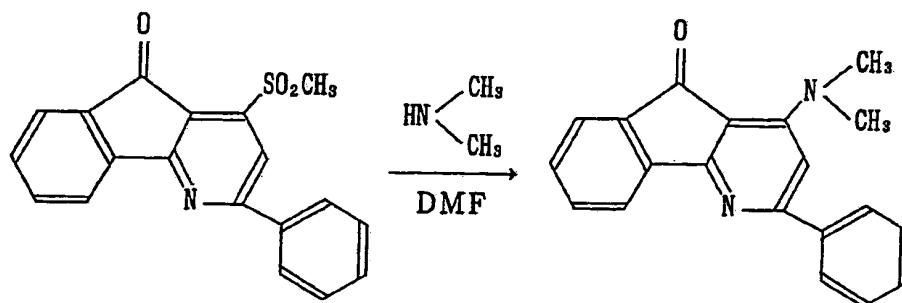
2-フェニル-4-メトキシ-5H-インデノ〔1,2-b〕ピリジン-5-オン（化合物番号I-13）



2-フェニル-4-メチルスルホニル-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン0.53gをメタノール15mlに懸濁し、28%ナトリウムメチラートメタノール溶液0.32gを滴下し、20分還流した。反応液を氷-水中に注ぎ、析出した結晶を濾取して乾燥した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製して、目的物0.25g（mp 192-5）を得た。

#### 実施例7

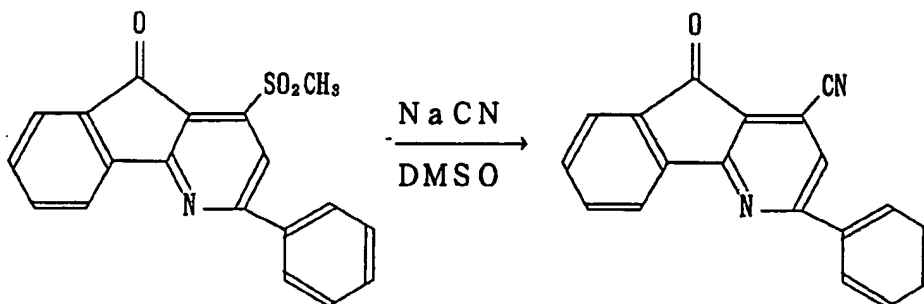
2-フェニル-4-(ジメチルアミノ)-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン（化合物番号I-14）



2-フェニル-4-メチルスルホニル-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン0.53gをDMF 10mlに懸濁し、50%ジメチルアミン水溶液0.43gを加えた。100℃で1時間攪拌した後、氷-水中に注ぎ、析出した結晶をろ取して乾燥し、目的物0.38g（mp 112-4℃）を得た。

#### 実施例8

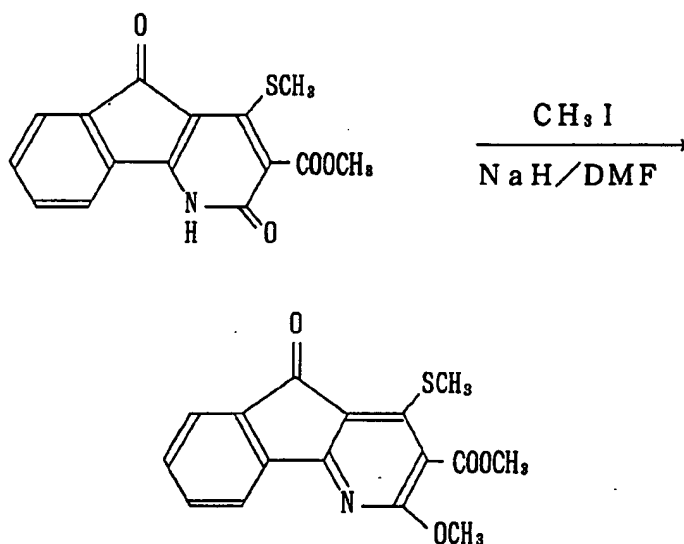
2-フェニル-4-シアノ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン（化合物番号I-15）



2-フェニル-4-メチルスルホニル-5H-インデノ〔1,2-b〕ピリジン-5-オン0.53g、シアン化ナトリウム0.26gをDMSO 10mlに懸濁し、60℃で10分攪拌した。放冷後反応液を水-水中に注ぎ析出した結晶をろ取し、水で十分洗浄して乾燥し、目的物0.25g (mp 245-6℃)を得た。

#### 実施例9

2-メトキシ-3-メトキシカルボニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1,2-b〕ピリジン-5-オン (化合物番号1-16)

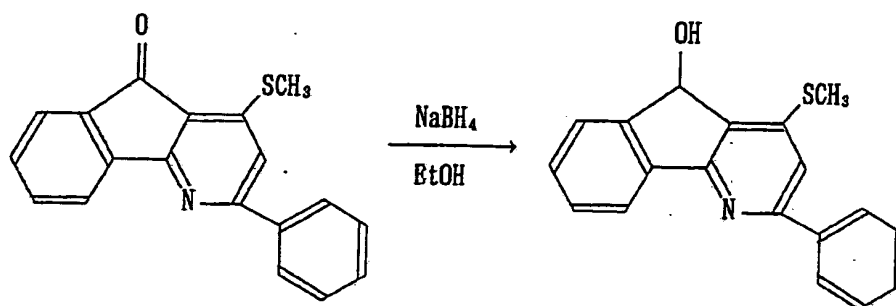


2,5-ジヒドロ-3-メトキシカルボニル-4-メチルチオ-1H-インデノ〔1,2-b〕ピリジン-2,5-ジオン1.5gを無水DMF 15mlに溶解し60%水素化ナトリウムオイルディスパーションを0.2g加え室温で15分攪

拌して、ヨウ化メチルを1.4 g 加え一夜攪拌した。反応液を氷-水中に注ぎベンゼン抽出し、飽和食塩水で洗浄後無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、ベンゼン）精製して、目的物0.1 g (mp 145-7°C) を得た。

#### 実施例 10

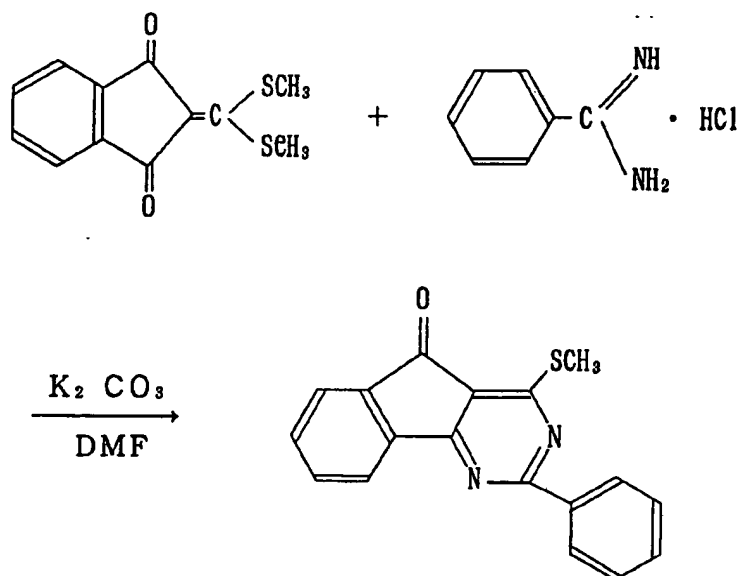
2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オール（化合物番号Ⅲ-4）



2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン0.3 g、水素化ホウ素ナトリウム0.25 gをエタノール20 mlに懸濁し、室温で2時間攪拌した。反応液を氷-水中に注ぎ、1N-HClを加え弱酸性にして、析出した結晶をろ取し乾燥した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製して目的物0.23 g (mp 200-3°C) を得た。

#### 実施例 11

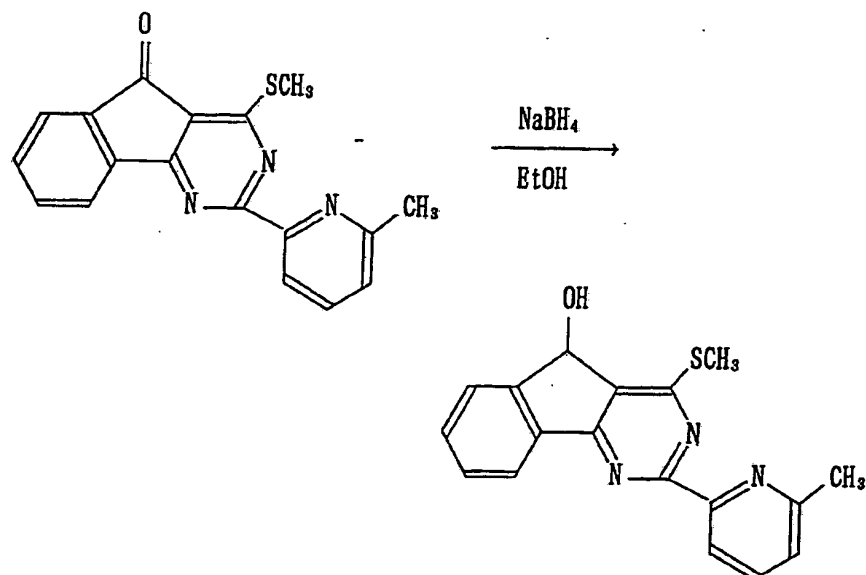
2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン（化合物番号Ⅱ-5）



2-ビス(メチルチオ)メチレン-インダン-1, 3-ジオン2.3 g、ベンズ  
アミジン塩酸塩1.83 g及び炭酸カリウム1.27 gを無水DMFに懸濁し、50  
～60℃で1時間攪拌した。反応液を氷-水中に注ぎ、ベンゼン抽出して、有機  
層を飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留  
去して、得られた粗生成物をベンゼン-ヘキサンから再結晶して目的物を1.0 g  
(mp 228-9℃)を得た。

#### 実施例12

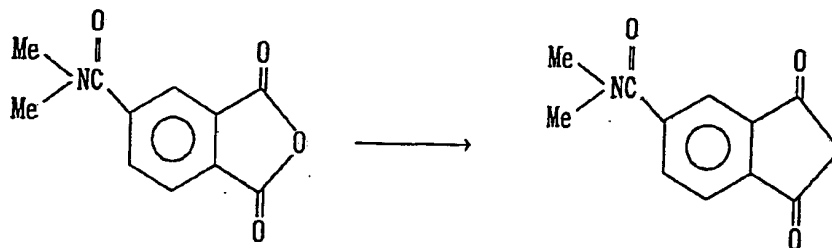
2-(6-メチル-2-ピリジル)-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1,  
2-d〕ピリミジン-5-オール(化合物番号Ⅲ-3)



2-(6-メチル-2-ピリジル)-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1,2-d〕ピリミジン-5-オン0.6 g、水素化ホウ素ナトリウム0.5 gをエタノール30 mlに懸濁し、室温で2時間攪拌した。反応液を氷-水中に注ぎ1 N-HClを加え中和して、析出した結晶をろ取り乾燥した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製して目的物0.51 g (mp 204-6°C)を得た。

#### 参考例2

5-(N,N-ジメチルカルバモイル)-インダン-1,3-ジオン



無水酢酸 (37.7 g) に、4-(N,N-ジメチルカルバモイル) 無水フタル酸 (13.5 g, 61.6 mmol) とアセト酢酸 t-ブチル (19.5 g, 123 mmol) とを加え、トリエチルアミン (12.5 g, 123 mmol) を滴下し、70~80°C



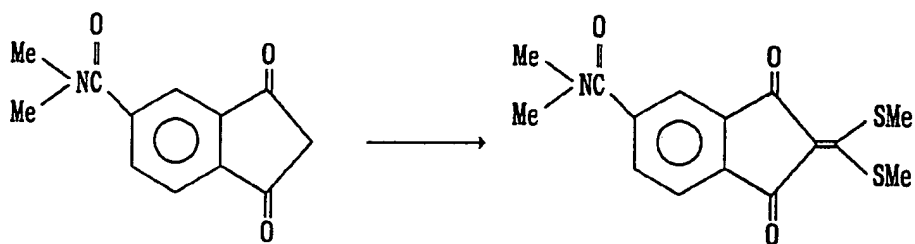
で4時間反応させた。反応後減圧下に過剰の無水酢酸と、生じた酢酸を留去し、残渣を水(200ml)と濃塩酸(13ml)より調製した塩酸水に注加し、クロロホルム(50ml×5)で抽出した。

クロロホルム層を水洗(50ml×2)後無水硫酸マグネシウムで乾燥し、クロロホルムを減圧下に留去した。

この残渣をクロロホルム-エーテルの混合溶媒を加えて結晶化させ、表記化合物5.4g (mp 133~5°C)を得た。

### 参考例3

2-ビス(メチルチオ)メチレン-5-(N, N-ジメチルカルバモイル)-インダン-1, 3-ジオン

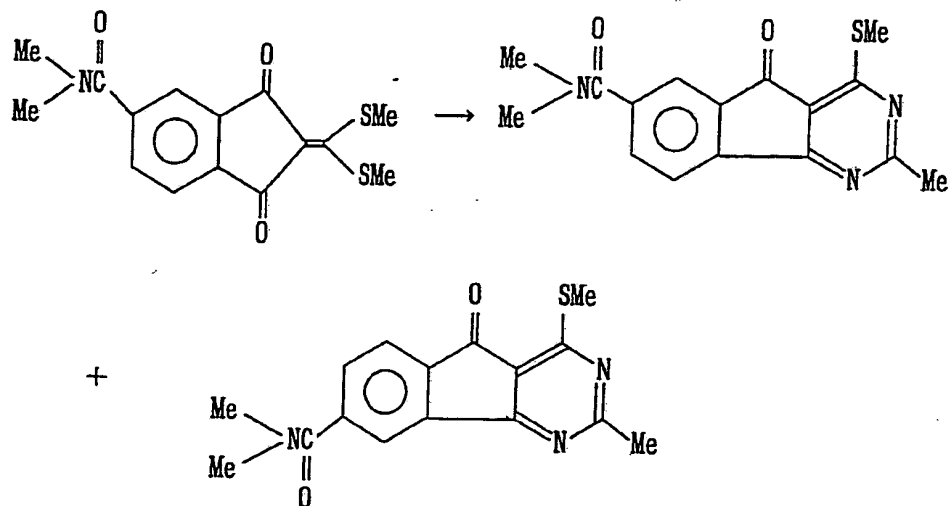


5-(N, N-ジメチルカルバモイル)-インダン-1, 3-ジオン(5g, 23.26mmol)を、DMF(50ml)に溶解した。この溶液に水酸化ナトリウム(1.86g, 46.5mmol)を水(5ml)に溶解した液を室温にて加えたあと、二硫化炭素(2.65g, 34.9mmol)を室温にて滴下し、そのまま2時間攪拌した。この溶液に、水冷下ヨウ化メチル(13.2g, 93mmol)を1時間かけて滴下し、さらに一夜攪拌した。反応液を水(300ml)にあけ、生ずる結晶を濾取、水洗、乾燥し、エーテルより再結晶した。収量6.0g, 収率80%, mp 145~7°C

### 実施例13

2-メチル-4-メチルチオ-7-(N, N-ジメチルカルバモイル)-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリジン-5-オン及び、2-メチル-4-メチルチオ-8-(N, N-ジメチルカルバモイル)-5H-インデノ〔1, 2-d〕

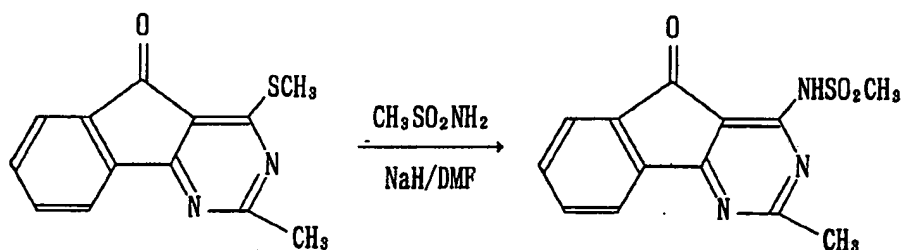
## ピリミジン-5-オン (化合物番号Ⅲ-1, Ⅲ-2)



2-ビス(メチルチオ)メチレン-5-(N, N-ジメチルカルバモイル)-インダン-1, 3-ジオン (1.50 g, 4.67 mmol) をDMF (30 ml) に溶解し、この溶液にアセトアミジン塩酸塩 (0.44 g, 4.67 mmol) と、無水炭酸カリウム (0.64 g, 4.67 mmol) を加えて、60° ~ 70°C で一夜反応させた。反応液を水 (200 ml) にあけ、クロロホルム (30 ml × 3) 抽出し、クロロホルム層を水洗 (50 ml × 2) し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、クロロホルムを減圧下に留去した。その残渣をカラムクロマトグラフィーで精製し、表記化合物のうちの7-カルバモイル体を0.55 g (mp 155-6°C)、8-カルバモイル体を0.45 g (mp 169-70°) 得た。

## 実施例14

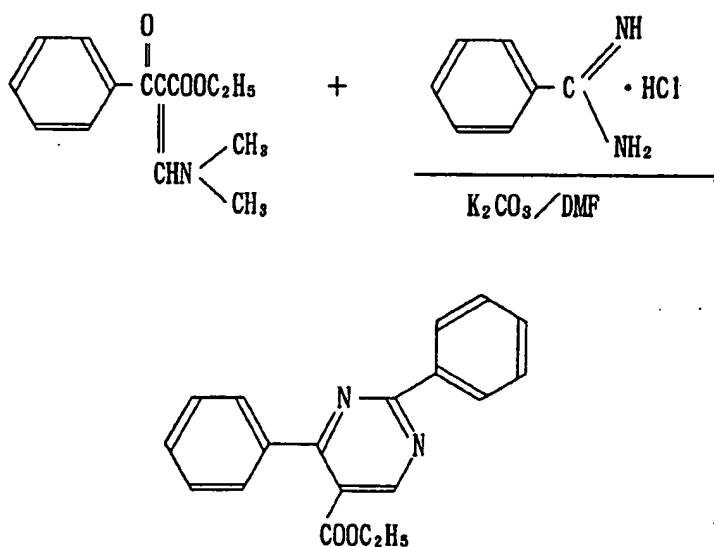
2-メチル-4-メチルスルホニルアミノ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン (化合物番号Ⅱ-13)



60%水素化ナトリウムオイルデスパージョン0.08gを無水DMF 5mlに懸濁し0℃に冷却して、メタンスルホンアミド0.19gを少量ずつ加えた。20分攪拌した後、2-メチル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1,2-d〕ピリミジン-5-オン0.48gを加え室温で一夜攪拌した。さらに徐々に昇温し120℃で2時間攪拌した。放冷後水-水中に注ぎ1N-塩酸で酸性にし、析出した結晶を乾燥し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、メタノール：クロロホルム=1：9）精製して目的物0.15g（mp 185-7℃）を得た。

#### 参考例4

##### 2,4-ジフェニルピリミジン-5-カルボン酸エチル

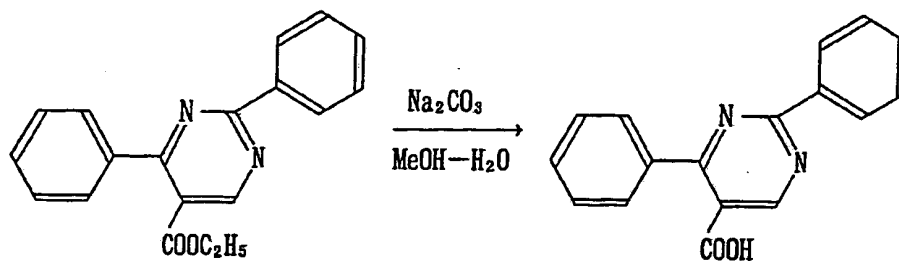


3-ジメチルアミノ-2-ベンゾイルアクリル酸エチル2g、ベンズアミジン塩酸塩1.25g、炭酸カリウム1.1gを無水DMFに懸濁し70℃で2時間攪拌

した。放冷後反応液を氷-水中に注ぎベンゼン抽出し、飽和食塩水で洗浄した後無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、酢酸エチル：ベンゼン＝1：3）精製して目的物1.56g（mp 50-2℃）を得た。

#### 参考例5

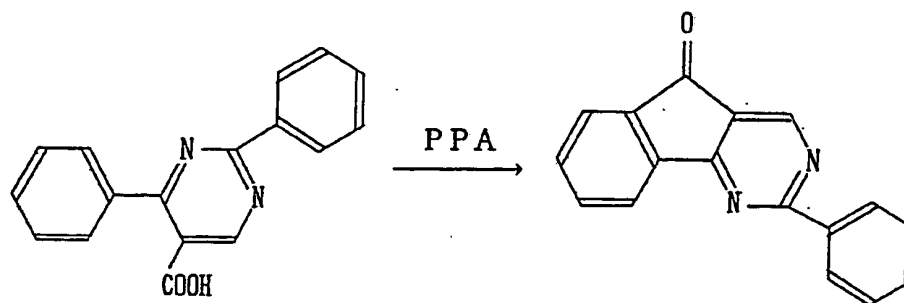
##### 2, 4-ジフェニルピリミジン-5-カルボン酸



2, 4-ジフェニルピリミジン-5-カルボン酸エチル1.56gをメタノール16mlに溶解し、50℃に加熱した。水7mlに溶解した炭酸ナトリウムを加え5時間還流した。冷却後水を加え1N-塩酸で酸性にし、クロロホルム抽出した後、飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して目的物を1.1g得た。

#### 実施例15

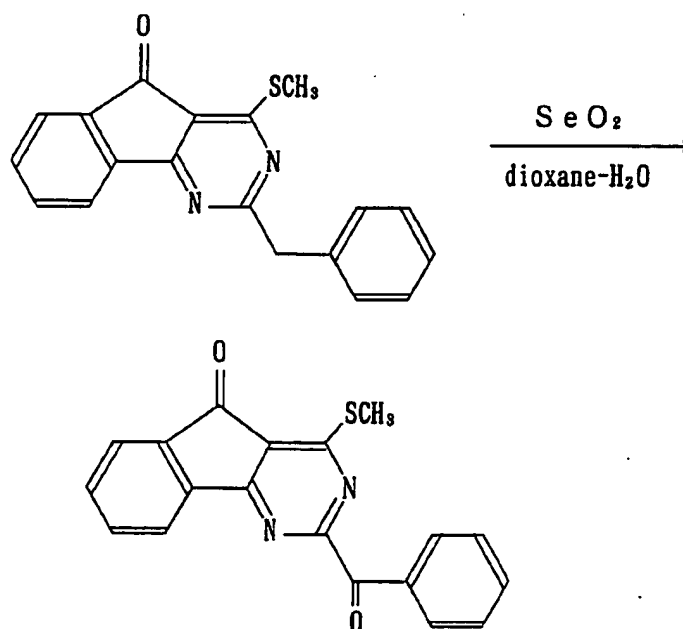
2-フェニル-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン（化合物番号II-14）



2, 4-ジフェニルピリミジン-5-カルボン酸0.4 gとポリリン酸6.1 gを窒素雰囲気下、170℃で一夜攪拌した。放冷後水を加えてクロロホルム抽出し、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、メタノール：クロロホルム＝1：9）精製して目的物0.2 g（mp 171-3℃）を得た。

#### 実施例16

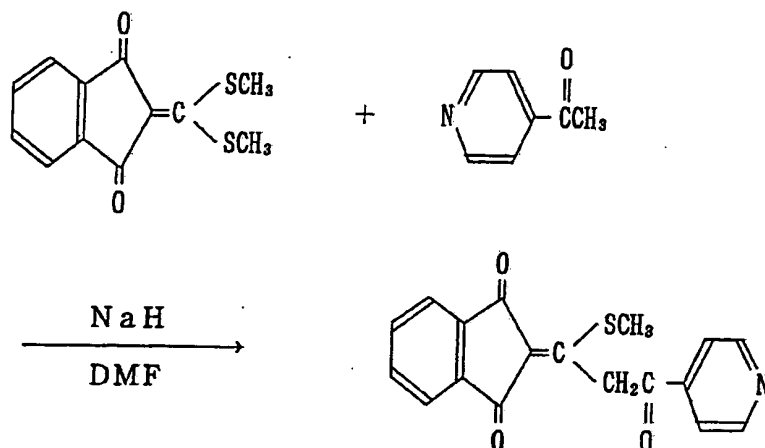
2-ベンゾイル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン（化合物番号II-26）



2-ベンジル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン1.3 gをジオキサン13 mlと水0.6 mlに懸濁し、二酸化セレン1.4 gを加え2時間還流した。反応液をセライトろ過し、ろ液に水および酢酸エチルを加え分液した。有機層を飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液；クロロホルム：ヘキサン＝1：1）精製して、目的物0.14 g（mp 211-4℃）を得た。

## 参考例 6

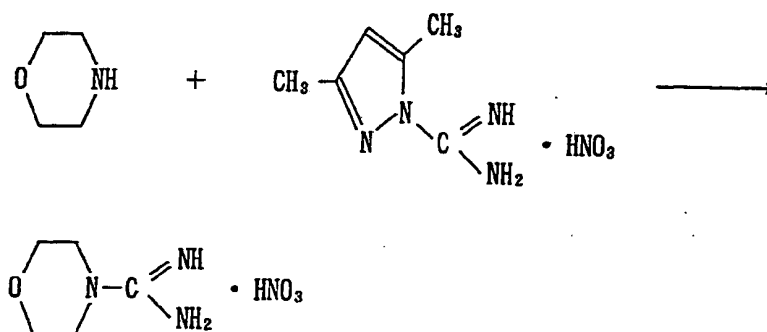
2-〔3-オキソ-3-(4-ピリジル)-1-メチルチオプロピリデン]-  
インダン-1,3-ジオン



60%水素化ナトリウムオイルデスパージョン8.0 gを無水DMF 300 ml  
中に懸濁させ、4-アセチルピリジンを滴下した。室温で20分攪拌して、2-  
ビス(メチルチオ)メチレン-インダン-1,3-ジオン25 gを加え室温で一  
晩攪拌した。反応液を氷水中に注ぎ1N-塩酸を加えてpH7にし、析出した結  
晶をろ取り乾燥した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー  
(溶出液、クロロホルム)精製して、目的物18.6 gを得た。

## 参考例 7

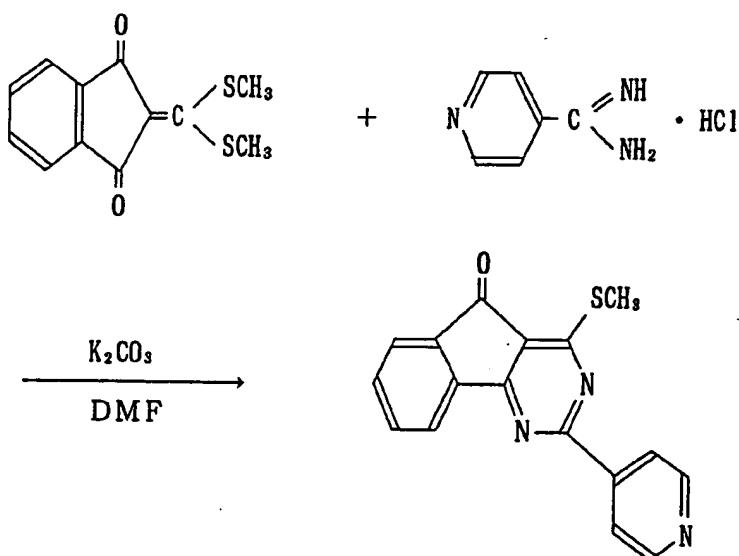
モルホリン-1-カルボキシアミジン硝酸塩



モルホリン4.35gと3, 5-ジメチルピラゾール-1-カルボキシアミジン硝酸塩2.01gを窒素雰囲気下で3時間還流した。過剰のモルホリンを減圧留去し、得られた粗生成物に酢酸エチルを加え水で抽出した。水層を減圧留去し、目的物2.5gを得た。

#### 実施例17

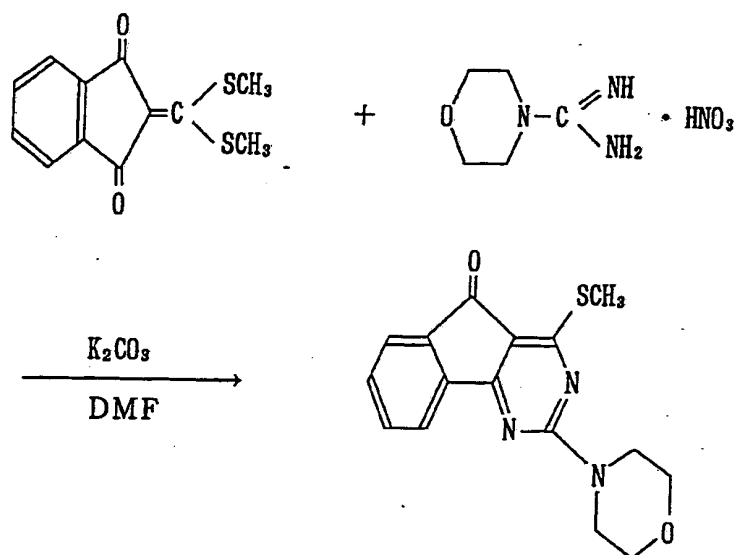
2-(4-ピリジル)-4-メチルチオ-5H-インデノ[1, 2-d]ピリミジン-5-オン(化合物番号II-8)



2-ビス(メチルチオ)メチレン-インダン-1, 3-ジオン16.32g, 4-ピリジンカルボキシアミジン塩酸塩10.22g及び炭酸カリウム9.01gを無水DMFに懸濁し70~80℃で1時間攪拌した。反応液を水-水中に注ぎ、析出した結晶をろ取した。水、ヘキサンで洗浄し乾燥して目的物16.19g(m.p. 267-9℃)を得た。

#### 実施例18

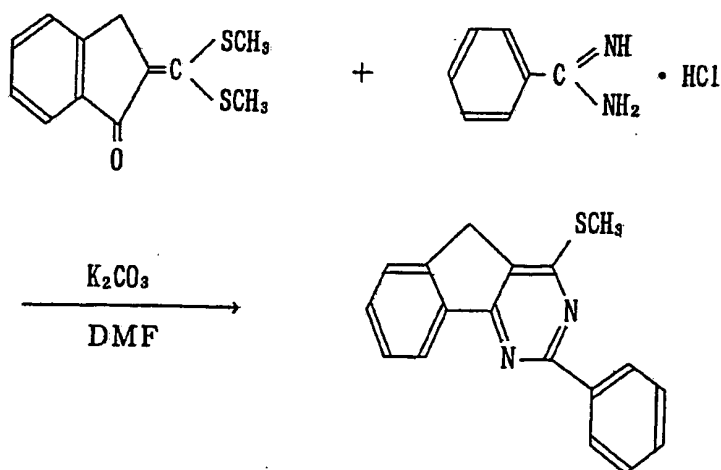
2-モルホリノ-4-メチルチオ-5H-インデノ[1, 2-d]ピリミジン-5-オン(化合物番号II-41)



2-ビス(メチルチオ)メチレン-インダン-1,3-ジオン3.13g, モルホリン-1-カルボキシアミジン硝酸塩2.4g及び炭酸カリウム1.73gを無水DMFに懸濁し、70～80℃で4時間攪拌した。反応液を氷-水中に注ぎ、析出した結晶をろ取り乾燥した。得られた粗生成物をクロロホルム-ヘキサンから再結晶して目的物1.25g (mp 237-8℃)を得た。

#### 実施例19

2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ[1,2-d]ピリミジン  
(化合物番号Ⅲ-6)

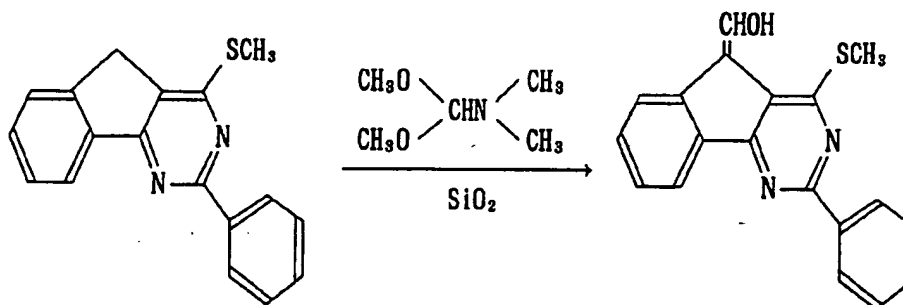




2-ビス(メチルチオ)メチレンインダノン2.36 g、ベンズアミジン塩酸塩1.57 g及び炭酸カリウム1.38 gを無水DMFに懸濁し、70～80℃で2時間攪拌した。反応液を氷-水中に注ぎ、ベンゼン抽出し、飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して、得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液、ベンゼン)精製して、目的物0.87 g (mp 137～9℃)を得た。

#### 実施例20

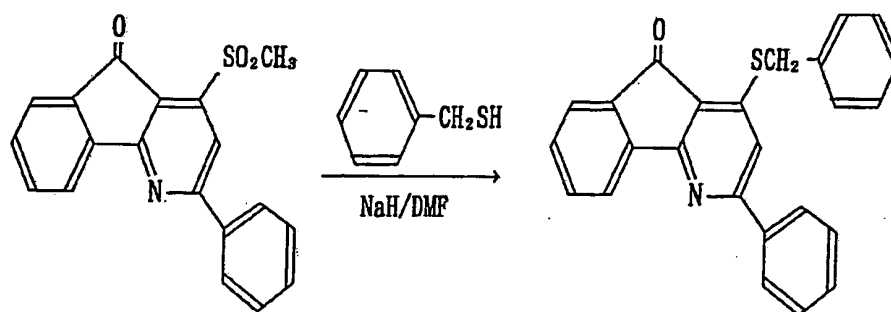
2-フェニル-4-メチルチオ-5-ヒドロキシメチリデン-5H-インデノ  
〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン(化合物番号Ⅲ-8)



2-メチル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン0.29 gをN,N-ジメチルホルムアミドジメチルアセタール0.6 gに溶解し、1時間還流した。反応後過剰のアセタールを減圧留去し、得られたジメチルアミノメチレン体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液、ベンゼン)にかけることにより加水分解して、目的物0.12 g (mp 241～3℃ dec)を得た。

#### 実施例21

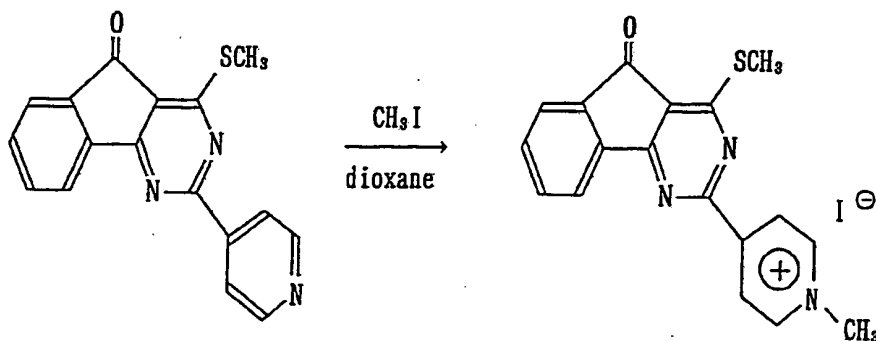
2-フェニル-4-ベンジルチオ-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン(化合物番号Ⅰ-19)



60%水素化ナトリウムオイルディスパージョン0.06 gを無水DMF 15 ml中に懸濁し、無水DMF 5 mlに溶解したベンジルメルカプタン0.2 gを滴下した。室温で5分攪拌した後、2-フェニル-4-メチルスルホニル-5H-インデノ〔1, 2-b〕ピリジン-5-オン0.53 gを加え、100℃で1時間攪拌した。冷却後水-水中に注ぎクロロホルム抽出した後、飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製して目的物0.35 g (mp 156-8℃)を得た。

#### 実施例22

〔2-〔4-（1-メチル）ピリジニウム〕-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン〕イオダイド（化合物番号II-32）



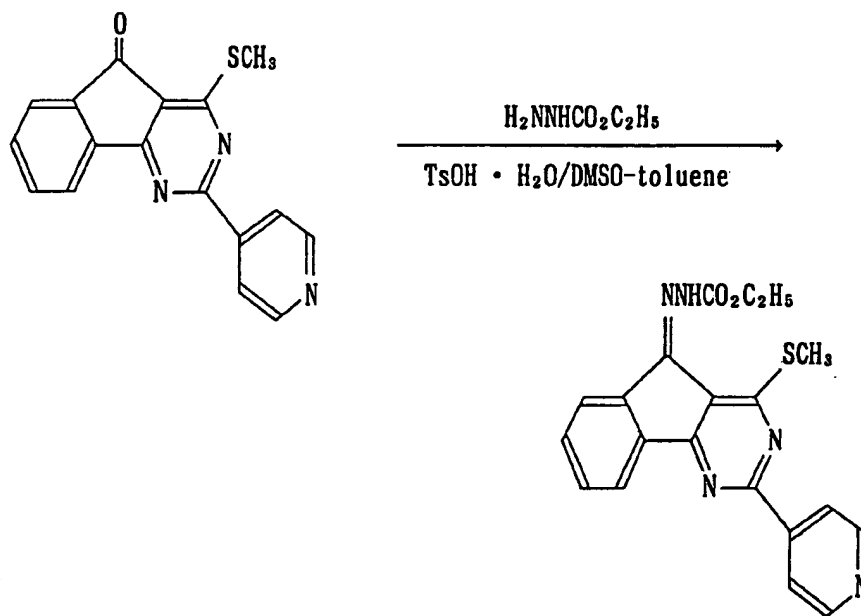
2-（4-ピリジル）-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン0.23 g及びヨウ化メチル0.35 gをジオキサン10 mlに加

え5時間還流した。放冷後、析出した結晶をろ取り目的物0.23g (mp 270℃以上)を得た。

NMR (DMSO) :  $\delta$  2.8 ppm (s, 3H), 4.5 (s, 3H), 7.8 (m, 3H), 8.0 (d, 1H), 9.0 (d, 2H), 9.2 (d, 2H)

### 実施例23

2-(4-ピリジル)-4-メチルチオ-5-エトキシカルボニルヒドラゾノ-5H-インデノ〔1,2-d〕ピリミジン-5-オン(化合物番号Ⅲ-5)

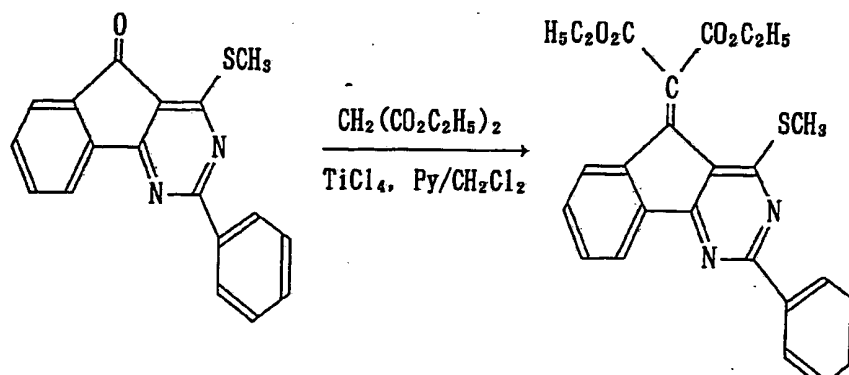


2-(4-ピリジル)-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1,2-d〕ピリミジン-5-オン0.53g、エチルカーバゼート0.20g及びパラトルエンスルホン酸-水和物0.1gをDMSO 10mlとトルエン10mlに加え、ジーンスタークを用いて水を留去しながら2時間還流した。放冷後、析出した結晶をろ取り、エーテル洗浄して目的物0.43g (mp 246-8℃)を得た。

### 実施例24

2-フェニル-4-メチルチオ-5-ビス(エトキシカルボニル)メチリデン

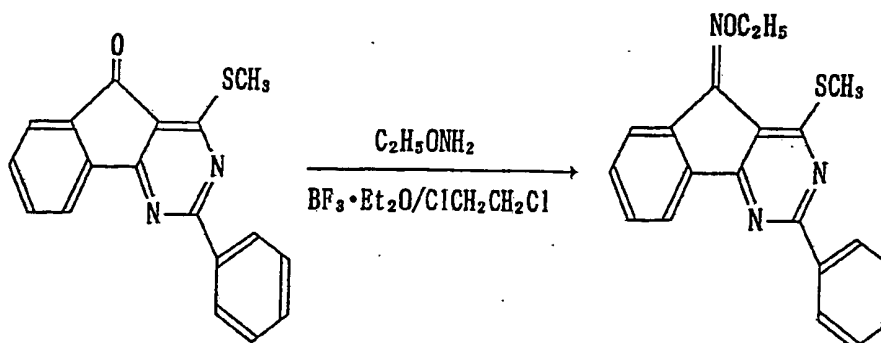
－5H－インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン－5－オン（化合物番号Ⅲ－10）



窒素雰囲気下で、2－フェニル－4－メチルチオ－5H－インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン－5－オン0.72gとマロン酸ジエチル0.57gをジクロロメタン20mlに溶解し、0℃に冷却して四塩化チタン1.5mlを滴下した。0℃で20分攪拌後、無水ピリジン2.2ml滴下した。0℃で2時間、室温で2時間反応させ、氷－水中に注ぎ、クロロホルム抽出した。1N－塩酸、1N－水酸化ナトリウム水溶液、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）で精製して目的物0.86g（mp 153－6℃）を得た。

#### 実施例 25

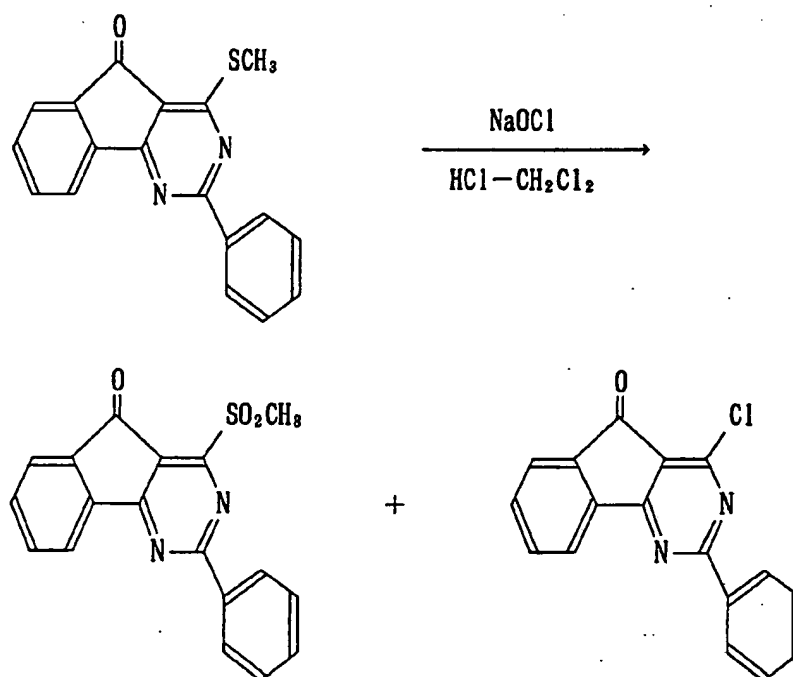
2－フェニル－4－メチルチオ－5－エトキシイミノ－5H－インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン－5－オン（化合物番号Ⅲ－9）



2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン1.01g及びエトキシアミン0.43gを1, 2-ジクロロエタン10mlに懸濁し、三フッ化ホウ素エーテラートを0.3ml加え4時間還流した。放冷後溶媒を減圧留去し、得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム：ヘキサン＝1：1）で精製し、目的物1.1g（mp 160-2℃）を得た。

#### 実施例 26

2-フェニル-4-メチルスルホニル-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン及び2-フェニル-4-クロロ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン（化合物番号II-54, II-55）

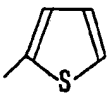
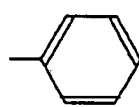
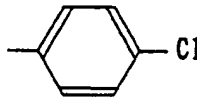
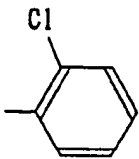
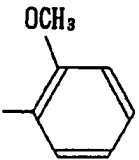
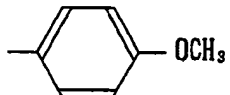
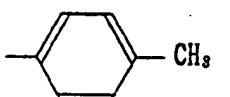


2-フェニル-4-メチルチオ-5H-インデノ〔1, 2-d〕ピリミジン-5-オン1.52g、濃塩酸2.5ml、水37.5mlをジクロロメタン12.5mlに溶解し0℃に冷却した。5%次亜塩素酸ナトリウム水溶液18.8gを滴下し、0℃で5時間攪拌した。有機層を分離し飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグ

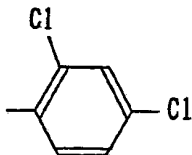
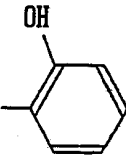
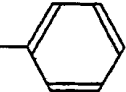
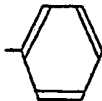

ネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して、得られた粗生成物をカラムクロマトグラフィー（溶出液、クロロホルム）精製し、表記化合物のうちクロル体0.38 g（mp 184-7°C）、スルホニル体を0.30 g（mp 230-3°C）得た。

上記実施例を含め、本発明化合物の代表例を第1表、第2表、第3表に示す。

第 1 表

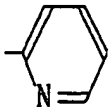
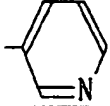
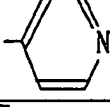
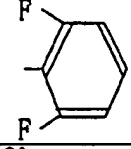
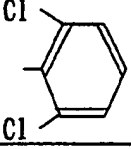
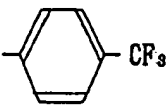
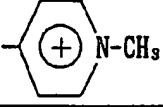
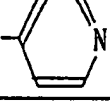


化合物 番 号	構 造 式			物 理 恒 数 [ ] mp (°C)
	R <sup>2</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>3</sup>	
I-1	SCH <sub>3</sub>	H		[218-20]
I-2	"	"	-OCH <sub>3</sub>	[172-5]
I-3	"	"		[179-80]
I-4	"	"		[239-41]
I-5	"	"		[253-5]
I-6	"	"		[200-2]
I-7	"	"		[190-3]
I-8	"	"		[180-2]

第 1 表 (つづき)

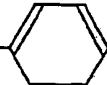
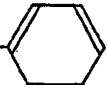
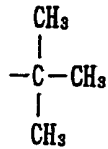
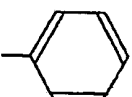
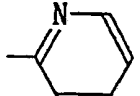
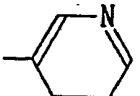
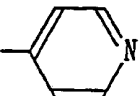
I-9	$\text{SCH}_3$	H		[267-70]
I-10	"	"		[228-30]
I-11	$\text{SOCH}_3$	"		[228-9]
I-12	$\text{SO}_2\text{CH}_3$	"	"	[232-3]
I-13	$\text{OCH}_3$	"	"	[192-5]
I-14	$\text{N} \begin{matrix} \text{CH}_3 \\ \text{CH}_3 \end{matrix}$	"	"	[112-4]
I-15	CN	"	"	[245-6]
I-16	$\text{SCH}_3$	$\text{COOCH}_3$	$\text{OCH}_3$	[145-7]
I-17	$\text{OCH}_3$	"	"	[145-50]
I-18	$\text{SC}_2\text{H}_5$	H		[140-4]
I-19	$\text{SCH}_2$ 	"	"	[156-8]



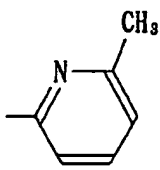
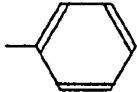
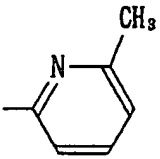
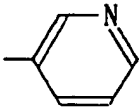
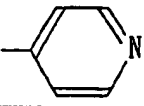
第 1 表 (つづき)

I-20	SCH <sub>3</sub>	H		[205-10]
I-21	"	"		[237-9]
I-22	"	"		[233-4]
I-23	"	"		#1 [270以上]
I-24	"	"		#2 [270以上]
I-25	"	"		[204-6]
I-26	"	"		#3 [270以上]
I-27	-SCH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	"		[230-2]
I-28	-NHC <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	"	"	[243-5]
I-29	-NHCH <sub>2</sub> - 	"	"	[254-6]
I-30	-N 	"	"	[253-6]
<sup>1</sup> H-NMR (DMSO-d <sub>6</sub> ), δ : ppm #1 2.6(s, 3H), 7.2(t, 2H), 7.4(s, 1H), 7.5-7.8(m, 5H) #2 2.5(s, 3H), 7.0(s, 1H), 7.3-8.0(m, 7H) #3 2.8(s, 3H), 4.4(s, 3H), 7.7(m, 3H), 8.0(d, 1H), 8.05(s, 1H), 8.95(d, 2H), 9.2(d, 2H)				


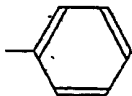
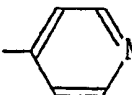
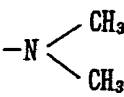
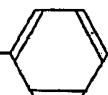
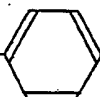
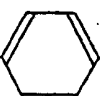
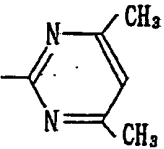
第 2 表

化合物 番 号	構 造 式		物 理 恒 数 [ ] mp (°C)
	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	
II-1	SCH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	[213-4 ]
II-2	"	-CH <sub>2</sub> - 	[138-40]
II-3	"	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> - 	[151-2 ]
II-4	"		[127-8 ]
II-5	"		[228-9 ]
II-6	"		[220-2 ]
II-7	"		[237-8 ]
II-8	"		[267-9 ]

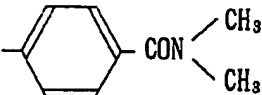
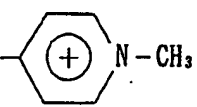
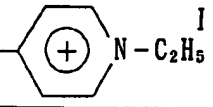
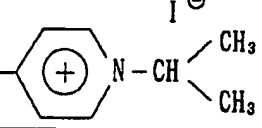
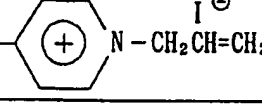
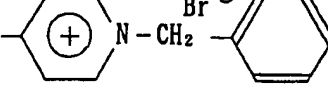
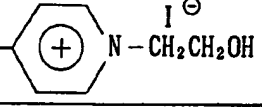
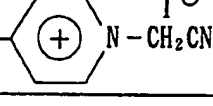
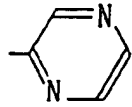
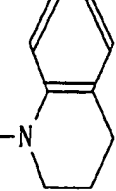
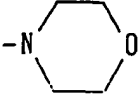
第 2 表 (つづき)

II-9	SCH <sub>3</sub>		[236-7]
II-10	"	-OCH <sub>3</sub>	[215-6]
II-11	"	-SCH <sub>3</sub>	[234-6]
II-12	"	-N $\begin{matrix} \text{CH}_3 \\ \text{CH}_3 \end{matrix}$	[244-5]
II-13	-NHSO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	[185-7]
II-14	H		[171-3]
II-15	"		[158-9]
II-16	"		[198-200]
II-17	"		[239-41]
II-18	SCH <sub>3</sub>	-NHCH <sub>3</sub>	[248-250]
II-19	"	-NH <sub>2</sub>	[270以上] <sup>*4</sup>

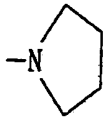
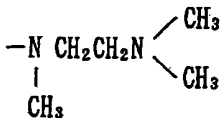
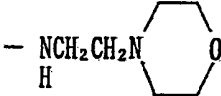
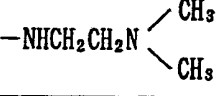
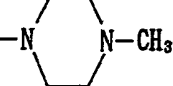
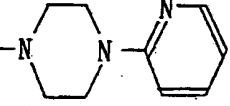
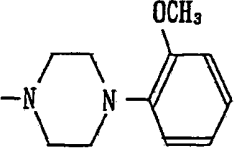
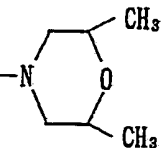
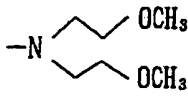
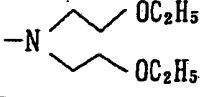
第 2 表 (つづき)

II-20	SCH <sub>3</sub>	-NHCN	<sup>#5</sup> [270以上]
II-21	"	-NHNO <sub>2</sub>	[215] dec
II-22	"	-NHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> N 	[104-107]
II-23	SC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		[170-171]
II-24	"		[192-193]
II-25	"	-N 	[199-201]
II-26	SCH <sub>3</sub>	-C(=O) 	[211-214]
II-27	"	-CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	[151-153]
II-28	"	-NH 	[210-3 ]
II-29	"	-N(CH <sub>3</sub> ) 	[175-6 ]
II-30	"		[229-30]

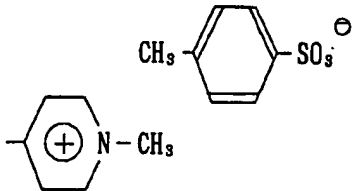
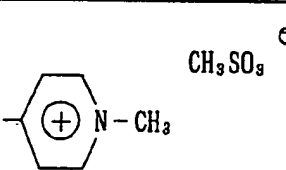
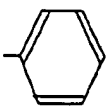
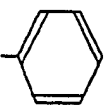
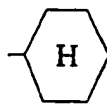
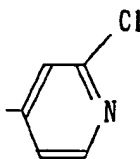
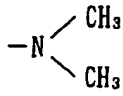
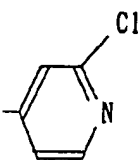
第 2 表 (つづき)

II-31	SCH <sub>3</sub>		[195-200]
II-32	"		<sup>#6</sup> [270以上]
II-33	"		<sup>#7</sup> [270以上]
II-34	"		<sup>#8</sup> [270以上]
II-35	"		[250-60]
II-36	"		[215-8 ]
II-37	"		<sup>#9</sup> [270以上]
II-38	"		[250] dec
II-39	"		[259-60]
II-40	"		[219-22]
II-41	"		[237-8 ]

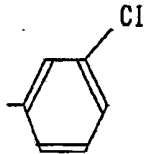
第 2 表 (つづき)

II-42	SCH <sub>3</sub>		[240.5-2]
II-43	"		*10 粘稠な Oil
II-44	"		[134-6]
II-45	"		[159-60]
II-46	"		[156-8]
II-47	"		[204-7]
II-48	"		[216-20]
II-49	"		[264-5]
II-50	"		23.8 n <sub>D</sub> 1.6285
II-51	"		23.9 n <sub>D</sub> 1.6187

第 2 表 (つづき)

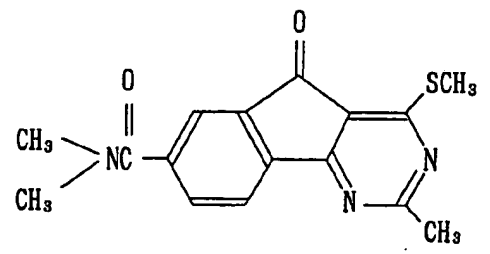
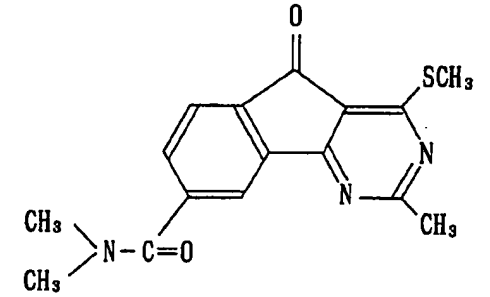
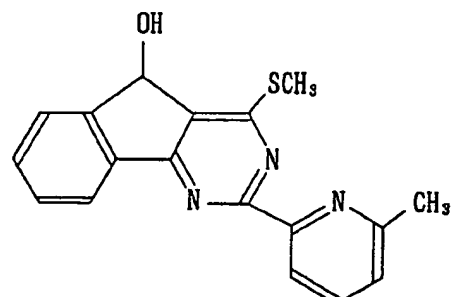
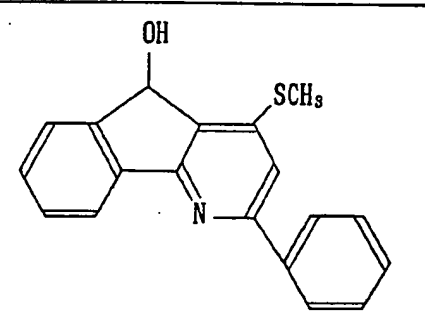
II-52	SCH <sub>3</sub>		[260] dec
II-53	"		[264] dec
II-54	Cl		[184-7 ]
II-55	SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>		[230-3 ]
II-56	-SCH <sub>3</sub>		[149-51]
II-57	-SCH <sub>3</sub>		[242-5 ]
II-58			[203-4 ]

第 2 表 (つづき)

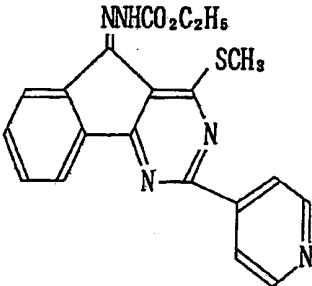
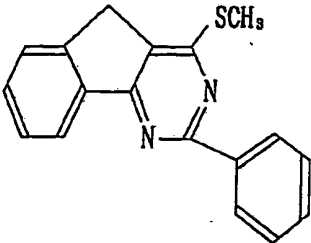
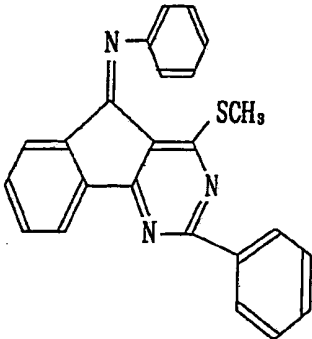
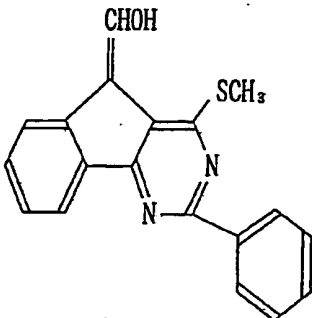
II-59	-SCH <sub>3</sub>		[218-21]
<sup>1</sup> H-NMR(DMSO-d <sub>6</sub> -CDCl <sub>3</sub> ), δ : ppm *4 2.5(s, 3H), 7.3(s, broad 2H), 7.6(m, 4H) *5 2.6(s, 3H), 7.7(m, 4H) (IR(KBr): ν <sub>CO</sub> 1700 cm <sup>-1</sup> ν <sub>CN</sub> 2200 cm <sup>-1</sup> ) <sup>1</sup> H-NMR(DMSO-d <sub>6</sub> ), δ : ppm *6 2.8(s, H), 4.5(s, 3H), 7.8(m, 3H), 8.0(d, 1H), 9.0(d, 2H), 9.2(d, 2H) *7 1.6(t, 3H), 2.8(s, 3H), 4.8(q, 2H), 7.8(m, 3H), 8.0(d, 1H), 9.0(d, 2H), 9.3(d, 2H) *8 1.7(d, 6H), 2.8(s, 3H), 5.2(m, 1H), 7.8(m, 3H), 8.1(d, 1H), 9.0(d, 2H), 9.4(d, 2H) *9 2.8(s, 3H), 4.0(m, 2H), 4.8(m, 2H), 7.8(m, 3H), 8.0(d, 1H), 9.0(d, 2H), 9.2(d, 2H) <sup>1</sup> H-NMR(CDCl <sub>3</sub> ), δ : ppm *10 2.3(s, 3H), 2.4(s, 3H), 2.5(s, 3H), 2.6(m, 2H), 3.4(d, 3H), 3.9(m, 2H), 7.6(m, 4H)			



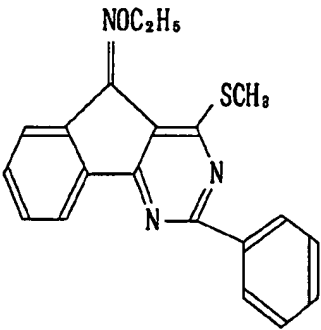
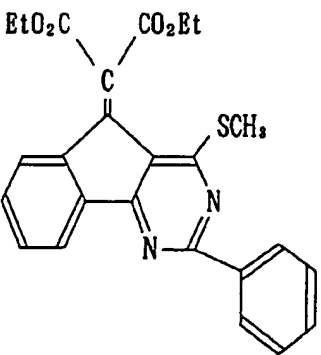
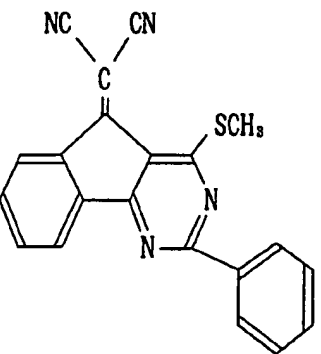
第 3 表

化合物番号	構 造 式	物理恒数 ( ) mp (°C)
Ⅲ-1		[155-6 ]
Ⅲ-2		[169-70]
Ⅲ-3		[204-6 ]
Ⅲ-4		[200-3 ]

第 3 表 (つづき)

III-5		[ 246-8 ]
III-6		[ 137-9 ]
III-7		[ 253-4 ]
III-8		(241-3) dec

第 3 表 (つづき)

III-9		[ 160-2 ]
III-10		[ 153-6 ]
III-11		[ 263-4 ]

本発明化合物は、広範囲の種類糸状菌に対しすぐれた殺菌力をもっていることから、花卉、芝、牧草を含む農園芸作物の栽培に際し発生する種々の病害、とくにうどんこ病やべと病の防除に使用することが出来る。たとえば、キュウリのうどんこ病 (Sphaerotheca fuliginea)、トマトのうどんこ病 (Erysiphe cichoracearum)、イチゴのうどんこ病 (Sphaerotheca humuli)、タバコのうどんこ病 (Erysiphe cichoracearum)、リンゴのうどんこ病 (Podosphaera leucotricha)、カキのうどんこ病 (Phyllactinia kakicola)、ブドウのうどんこ病 (Uncinula necator)、べと病 (Plasmopara viticola)、ナシのうどんこ病 (Phyllactinia pyri)、オオムギのうどんこ病 (Erysiphe graminis f. sp. hordei)、コムギのうどんこ病 (Erysiphe graminis f. sp. tritici)、オーチャードグラスのうどんこ病 (Erysiphe graminis)、ヒマワリのうどんこ病 (Sphaerotheca fuliginea)、ガーベラのうどんこ病 (Sphaerotheca fuliginea)、バラのうどんこ病 (Sphaerotheca pannosa) などの病害防除に使用することが出来る。

また、ベンズイミダゾール系殺菌剤（例えば、チオファネートメチル、ベノミル、カルベンダジム）に耐性を示すキュウリうどんこ病菌 (Sphaerotheca fuliginea) や、エルゴステロール生合成阻害型の殺菌剤（例えば、トリアジメホン、トリフルミゾール）に感受性が低下しているキュウリうどんこ病菌 (Sphaerotheca fuliginea) に対しても本発明化合物はこれら菌の感受性菌と同様に有効である。

本発明化合物は、水棲生物が船底、漁網等の水中接触物に付着するのを防止するための防汚剤として使用することも出来る。

このようにして得られた本発明化合物を実際に施用する際には他成分を加えず

純粋な形で使用できるし、また農薬として使用する目的で一般の農薬のとり得る形態、即ち、水和剤、粒剤、粉剤、乳剤、水溶剤、懸濁剤等の形態で使用することもできる。添加剤および担体としては固型剤を目的とする場合は、大豆粉、小麦粉等の植物性粉末、珪藻土、燃灰石、石こう、タルク、パイロフィライト、クレイ、鉱物油、植物油等の鉱物性微粉末が使用される。液体の剤型を目的とする場合は、ケロシン、鉱油、石油、ソルベントナフサ、キシレン、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、アルコール、アセトン、鉱物油、植物油、水等を溶剤として使用する。これらの製剤において均一かつ安定な形態をとるために、必要ならば界面活性剤を添加することもできる。このようにして得られた水和剤、乳剤、懸濁剤は水で所定の濃度に希釈して懸濁液あるいは乳濁液として、粉剤・粒剤はそのまま植物に散布する方法で使用する。

次に、本発明の組成物の実施例を若干示すが、添加物及び添加割合は、これら実施例に限定されるべきものではなく、広い範囲に変化させることが可能である。製剤実施例中の部は重量部を示す。

#### 実施例 27 水和剤

本発明化合物	40部
珪藻土	53部
高級アルコール硫酸エステル	4部
アルキルナフタレンスルホン酸塩	3部

以上を均一に混合して微細に粉碎すれば、有効成分40%の水和剤を得る。

#### 実施例 28 乳剤

本発明化合物	3部
キシレン	45部
ジメチルホルムアミド	45部
ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル	7部

以上を混合溶解すれば、有効成分3%の乳剤を得る。

## 実施例 29 粉剤

本発明化合物	10部
タルク	89部
ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル	1部

以上を均一に混合して微細に粉碎すれば、有効成分10%の粉剤を得る。

## 実施例 30 粒剤

本発明化合物	5部
クレー	73部
ベントナイト	20部
ジオクチルスルホサキシネートナトリウム塩	1部
リン酸ナトリウム	1部

以上をよく粉碎混合し、水を加えてよく練り合せた後、造粒乾燥して有効成分5%の粒剤を得る。

## 実施例 31 懸濁剤

本発明化合物	10部
リグニンスルホン酸ナトリウム	4部
ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム	1部
キサンタンガム	0.2部
水	84.8部

以上を混合し、粒度が1ミクロン以下になるまで湿式粉碎すれば、有効成分10%の懸濁剤を得る。

なお、本発明化合物は単独でも十分有効であることは言うまでもないが、効力が不十分もしくは弱い病害又は有害昆虫、ダニに対しては各種の殺菌剤や殺虫・殺ダニ剤の1種又は2種以上と混合して使用することも出来る。

本発明化合物と混合して使用出来る殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、植物生長調節剤の代表例を以下に示す。

[殺菌剤]

キャプタン、フォルペット、チウラム、ジネブ、マンネブ、マンコゼブ、プロピネブ、ポリカーバメート、クロロタロニル、キントーゼン、キャプタホル、イプロジオン、プロサイミドン、ピンクロゾリン、フルオロイミド、サイモキサニル、メプロニル、フルトラニル、ペンシクロン、オキシカルボキシ、ホセチルアルミニウム、プロパモカーブ、トリアジメホン、トリアジメノール、プロピコナゾール、ジクロブトラゾール、ビテルタノール、ヘキサコナゾール、マイクロブタニル、フルシラゾール、エタコナゾール、フルオトリマゾール、フルトリアフェン、ペンコナゾール、ジニコナゾール、サイプロコナゾール、フェナリモール、トリフルミゾール、プロクロラズ、イマザリル、ペフラゾエート、トリデモルフ、フェンプロピモルフ、トリホリン、ピリフェノックス、アニラジン、ポリオキシ、メタラキシル、オキサジキシル、フララキシル、イソプロチオラン、プロベナゾール、ピロールニトリン、ブラストサイジンS、カスガマイシン、バリダマイシン、硫酸ジヒドロストレプトマイシン、ベノミル、カルベンダジム、チオファネートメチル、ヒメキサゾール、塩基性塩化銅、塩基性硫酸銅、フェンチンアセテート、水酸化トリフェニル錫、ジエトフェンカルブ、メタスルホカルブ、キノメチオナート、ビナパクリル、レシチン、重曹、ジチアノン、ジノカップ、フェナミノスルフ、ジクロメジン、グアザチン、ドジン、IBP、エディフェンホス、メパニピリム、フェリムゾン、トリクラミド、メタスルホカルブ、フルアジナム、エトキノラック、ジメトモルフ、ピロキロン、テクロフタラム、フサライド。

〔殺虫・殺ダニ剤〕

クロルベンジレート、クロルプロピレート、プロクロノール、フェニソプロモレート、ジコホル、ジノブトン、クロルフェナミジン、アミトラズ、BPPS、PPPS、ベンゾメート、ヘキシチアゾクス、酸化フェンブタスズ、ポリナクチン、チオキノックス、CPCBS、テトラジホン、イソキサチオン、アベルメクチン、多硫化石灰、クロフェンテジン、フルベンズミン、フルフェノクスロン、BCPE、シヘキサチン、ピリダベン、フェンピロキシメート、フェンチオン、

フェニトロチオン、ダイアジノン、クロルピリホス、ESP、バミドチオン、フェントエート、ジメトエート、ホルモチオン、マラチオン、ジブテレックス、チオメトン、ホスメット、メナゾン、ジクロルボス、アセフェート、EPBP、ジアリホール、メチルパラチオン、オキシジメトンメチル、エチオン、ピラクロホス、モノクロトホス、メソミルモノクロトホス、アルディカーブ、プロボキシール、BPMC、MTMC、ナック、カルタップ、カルボスルファン、ベンフラカルブ、ピリミカーブ、エチオフェンカルブ、フェノキシカルブ、パーメスリン、サイパーメスリン、デカメスリン、フェンバレレート、フェンプロパスリン、ピレトリン、アレスリン、テトラメスリン、レスメスリン、ジメスリン、プロパスリン、ビフェンスリン、プロスリン、フルバリネート、シフルスリン、シハロスリン、フルシリネート、エトフェンプロックス、シクロプロトリン、トラロメスリン、シラネオファン、ジフルベンズロン、クロルフルアズロン、トリフルムロン、テフルベンズロン、ブプロフェジン、機械油。

〔植物生長調節剤〕

ジベレリン類（例えばジベレリンA<sub>3</sub>、ジベレリンA<sub>4</sub>、ジベレリンA<sub>7</sub>）

IAA、NAA。

産業上の利用可能性：

次に、本発明化合物が各種植物病害防除剤の有効成分として有用であることを試験例で示す。防除効果は、調査時の供試植物の発病状態、すなわち葉、茎等に出現する病斑や菌そうの生育の程度を肉眼観察し、菌そう、病斑が全く認められなければ「5」、無処理区に比べ10%程度認めれば「4」、25%程度認めれば「3」、50%程度認めれば「2」、75%程度認めれば「1」、無処理区の発病状態と差異がなければ「0」として、0～5の6段階に評価し、0、1、2、3、4、5で示す。

試験例1 コムギうどんこ病防除試験（予防試験）

素焼きポットで栽培したコムギ幼苗（品種「農林61号」1.0～1.2葉期）に本発明化合物の水和剤の所定濃度の薬液を散布し、葉を風乾させた後、コムギ



うどんこ病菌 (Erysiphe graminis f. sp. tritici  
i) の分生胞子を振り払い接種し、22～25℃の温室で7日間生育させ、防除  
効果を調査した。その結果を第4表に示す。

第 4 表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除効果	薬害
I-1	200	4	なし
-2	"	5	"
-3	"	5	"
-7	"	4	"
-8	"	5	"
-14	"	5	"
-20	"	5	"
-22	"	5	"
-25	"	4	"
-26	"	5	"
II-5	"	5	"
-7	"	4	"
-8	"	5	"
-12	"	4	"
-22	"	4	"
-24	"	4	"
-25	"	5	"
-31	"	4	"
-32	"	5	"
-33	"	5	"
-34	"	4	"
-35	"	5	"
-36	"	5	"
-37	"	5	"
-38	"	5	"
-41	"	5	"
-42	"	4	"
-43	"	5	"
-46	"	4	"
-52	"	4	"
-53	"	4	"
III-5	"	5	"
対照剤A*1	"	3	"

\*1 : sulfur, 水和硫黄75%水和剤

## 試験例2 キュウリうどんこ病防除試験

約3週間温室でポット栽培したキュウリ（品種「相模半白」）苗に、本発明化合物の水和剤の所定濃度の薬液を十分量散布し、風乾させたのち、キュウリうどんこ病菌（Sphaerotheca fuliginea、薬剤に感受性な菌、以下薬剤感性菌およびエルゴステロール生合成阻害型の殺菌剤に感受性が低下した菌、以下感受性低下菌）の分生孢子懸濁液を噴霧接種した。これを23～25℃の恒温室におき、菌接種10日後に発病状態を調査した。その結果を第5表に示す。

第 5 表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防 除 効 果		葉 害
		薬 剤 感 性 菌	感 受 性 低 下 菌	
I-1	200	4	4	な し
-2	"	5	5	"
-3	"	5	5	"
-4	"	5	5	"
-8	"	5	5	"
-20	"	5	5	"
-22	"	5	5	"
-25	"	4	4	"
-26	"	5	5	"
II-5	"	5	5	"
-6	"	4	4	"
-8	"	5	5	"
-22	"	4	4	"
-24	"	4	4	"

第 5 表 (つづき)

-25	200	5	5	なし
-31	"	4	4	"
-32	"	5	5	"
-33	"	5	5	"
-34	"	4	4	"
-35	"	5	5	"
-36	"	5	5	"
-37	"	5	5	"
-38	"	5	5	"
-41	"	5	5	"
-42	"	4	4	"
-43	"	5	5	"
-46	"	4	4	"
-52	"	4	4	"
-53	"	4	4	"
Ⅲ-5	"	5	5	"
対照剤A* <sup>1</sup>	"	3	3	"
対照剤B* <sup>2</sup>	"	5	1	"

\* 1 : sulfur, 水和硫黄75%水和剤

\* 2 : triadimefon 25%水和剤

## 試験例3 ブドウべと病防除試験

露地植えブドウ(品種「甲斐路」, 3年生)の葉を切りとり、直径30mmの円盤に打ちぬいたものを、本発明化合物の水和剤の所定濃度の薬液にうかべ、ブドウべと病菌(Plasmopara viticola)の遊走子のうの懸濁液を噴霧接種し、照明下、20℃、湿室に保ち、接種10日後に発病の状況を調査した。その結果を第6表に示す。

第 6 表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除効果	薬害
I-5	200	5	なし
-9	"	4	"
II-45	"	4	"
-46	"	4	"
対照剤C*3	"	4	"

\*3 マンゼブ75%水和剤

## 試験例4 リング黒星病防除試験（予防試験）

素焼きポットで栽培したリンゴ幼苗（品種「国光」、3～4葉期）に、本発明化合物の水和剤の所定濃度の薬液を散布し風乾させた後、リンゴ黒星病菌（*Venturia inaequalis*）の分生孢子を接種し、照明下（明・暗くりかえし）、20℃、高湿度の室内に2週間保持した後、防除効果を調査した。その結果を第7表に示す。

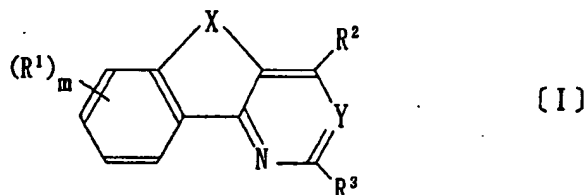
第 7 表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除効果	薬害
I-26	200	4	なし
II-32	"	4	"
-43	"	4	"
-45	"	4	"
-46	"	4	"
対照剤D*4	"	4	"

\*4 キャプタン 80%水和剤

## 請求の範囲

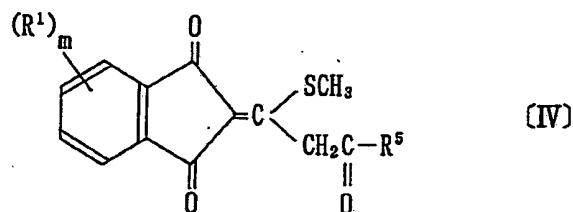
## 1. 一般式〔I〕



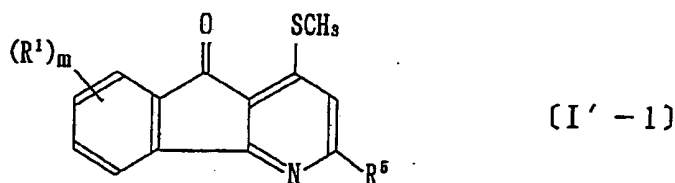
〔式中、 $m$ は1～4の整数、 $R^1$ は、同一又は相異なって、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルチオ基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、低級アルキルでモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基またはハロゲン原子を表し、 $X$ は $C=Z$ 〔 $Z$ は酸素原子、 $CH(OH)$ 、 $Cr^1(r^2)$ （ $r^1$ 、 $r^2$ は同一又は相異なってシアノ基、アルコキシカルボニル基、または低級アルキルでモノもしくはジ置換されてもよいカルバモイル基を表す。））、 $Nr^3$ （ $r^3$ は低級アルキル基、置換されてもよいフェニル基、低級アルコキシ基、低級アルキルアミノ基、ヒドロキシ基、置換されてもよいフェニルアミノ基、低級アルコキシカルボニルアミノ基を表す。）〕、 $CH(OH)$ 、 $CH_2$ を表し、 $Y$ は $N$ 、 $C(R^4)$ （ $R^4$ は、水素原子、低級アルコキシカルボニル基を表す。）を表し、 $R^2$ は、水素原子、 $S(O)_n$ （ $r^5$ （ $r^5$ は置換されてもよい低級アルキル基、 $n$ は0、1又は2を表す。））、低級アルコキシ基、低級アルキルスルホニルアミノ基、置換されてもよいフェニルスルホニルアミノ基、シアノ基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、モルホリノ基、又は置換されてもよいフェニルアルキルもしくは低級アルキルで置換されていてもよいアミノ基を、 $R^3$ は、水素原子、低級アルコキシ基、低級アルキル基、シクロアルキル基、置換されてもよいベンゾイル基、置換されてもよいチエニルカルボニル基、置換されてもよいピリジルカルボニル基、低級アルコキシアルキル基、低級アルキルチオ基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよい $N$ 、 $S$ 、 $O$ を1～2個含む5～6

員のヘテロ環基、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基、又はシアノ、ニトロ、N, S, Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環で置換されたアルキル、置換されてもよいフェニル、低級アルコキシもしくは低級アルキルで置換されてもよいアミノ基を表す。)で表される化合物及びその塩。

## 2. 式 (IV)

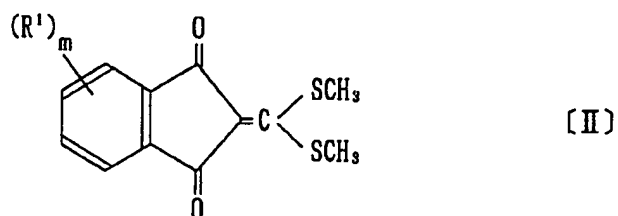


〔式中R<sup>1</sup>、mは前記と同じ意味を表し、R<sup>5</sup>は低級アルキル基、シクロアルキル基、低級アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいN, S, Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環基(但し、炭素原子で結合する)、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基を表す。〕で表わされる化合物をアンモニウム塩存在下に閉環させることを特徴とする式〔I' - 1〕



〔式中R<sup>1</sup>、m、R<sup>5</sup>は前記と同じ意味を表す。〕で表わされる化合物の製法。

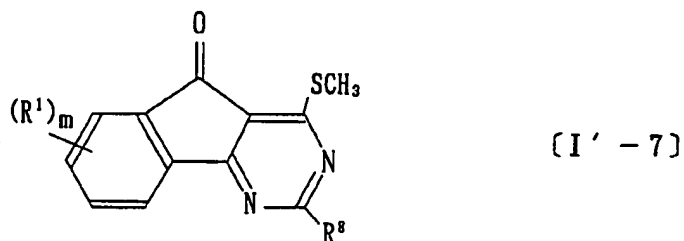
## 3. 式〔II〕



〔式中R<sup>1</sup>、m、は前記と同じ意味を表す。〕で表わされる化合物と式〔VIII〕

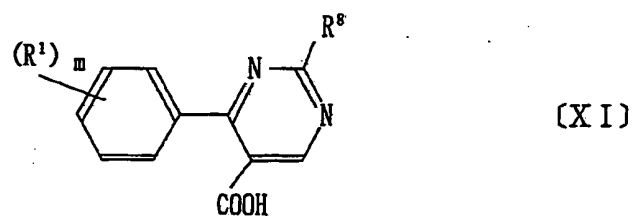


〔式中、R<sup>8</sup> は水素原子、低級アルコキシ基、低級アルキル基、シクロアルキル基、低級アルコキシアルキル基、低級アルキルチオ基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいN、S、Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環基、置換されてもよいフェニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいチエニルで置換されたアルキル基、置換されてもよいピリジルで置換されたアルキル基、又はシアノ、ニトロ、N、S、Oを1～2個含む5～6員のヘテロ環で置換されたアルキル、置換されてもよいフェニル、低級アルコキシもしくは低級アルキルで置換されてもよいアミノ基を表す。〕で表わされる化合物を反応させることを特徴とする式〔I' - 7〕

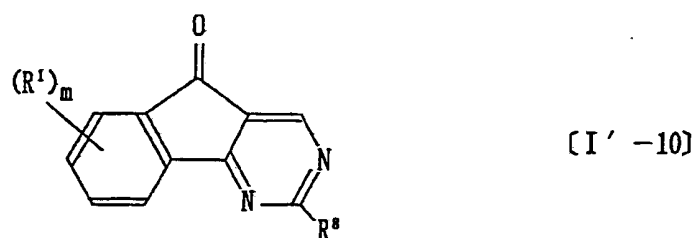


〔式中、R<sup>1</sup>、m、R<sup>8</sup> は前記と同じ意味を表す。〕で表わされる化合物の製法。

## 4. 式〔XI〕

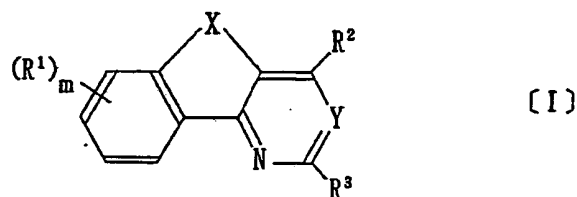


〔式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$  は前記と同じ意味を表す。〕で表わされる化合物を脱水縮合させることを特徴とする式 〔I' - 10〕



〔式中、 $R^1$ 、 $m$ 、 $R^8$  は前記と同じ意味を表す。〕で表わされる化合物の製法。

## 5.



〔式中、 $X$ 、 $Y$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $m$  は前記と同じ意味を表す。〕で表わされる化合物及びその塩の1種又は2種以上を含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP92/01384

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl<sup>5</sup> C07D221/16, C07D239/93, C07D401/04,  
C07D403/04, C07D409/04, C07D487/04  
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl<sup>5</sup> C07D221/16, C07D239/93, C07D401/04,  
C07D403/04, C07D409/04, C07D487/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US, A, 4,717,725 (Alcon Laboratories, Inc.), January 5, 1988 (05. 01. 88)	1

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

December 24, 1992 (24. 12. 92)

Date of mailing of the international search report

January 26, 1993 (26. 01. 93)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>5</sup>

C07D221/16, C07D239/93, C07D401/04,  
C07D403/04, C07D409/04, C07D487/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>5</sup>

C07D221/16, C07D239/93, C07D401/04,  
C07D403/04, C07D409/04, C07D487/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, A, 4,717,725 (Alcon Laboratories, Inc.), 5. 1月. 1988 (05. 01. 88)	1

☐ C 類の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日  
若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献  
(理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日  
の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と  
矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のため  
に引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規  
性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文  
献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性  
がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

24. 12. 92

国際調査報告の発送日

26.01.93

名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

赤坂信一

4 C 6 7 0 1

電話番号 03-3581-1101 内線

3452